

## 明 細 書

### 積層型圧電素子

#### 技術分野

[0001] 本発明は、積層型圧電素子および噴射装置に関し、例えば、自動車エンジンの燃料噴射装置、インクジェット等の液体噴射装置、光学装置等の精密位置決め装置や振動防止装置等に搭載される駆動素子、ならびに燃焼圧センサ、ノックセンサ、加速度センサ、荷重センサ、超音波センサ、感圧センサ、ヨーレートセンサ等に搭載されるセンサ素子、ならびに圧電ジャイロ、圧電スイッチ、圧電トランス、圧電ブレーカー等に搭載される回路素子に用いられる積層型圧電素子および噴射装置に関するものである。

#### 背景技術

[0002] 従来より、積層型圧電素子としては、圧電体と電極を交互に積層した積層型圧電アクチュエータが知られている。積層型圧電アクチュエータは、同時焼成タイプと、圧電磁器と内部電極板を交互に積層したスタックタイプの2種類に分類されるが、低電圧化、製造コスト低減の面から同時焼成タイプの積層型圧電アクチュエータが優位性を示しつつある。また、この同時焼成タイプの積層型圧電アクチュエータは薄層化及び耐久性の面で有利である

[0003] 図7は、従来の積層型圧電アクチュエータの一例を示す断面図である。この積層型圧電アクチュエータは、圧電体51と内部電極52が交互に積層された駆動積層部53とその積層方向の両端面に設けられた不活性保護部55によって構成される。この例では、内部電極52は、側面において、隣接する2つの内部電極52のうちの一方の端部が駆動積層部53の側面に露出し、他方の端部は、絶縁体61により被覆されている。そして、内部電極52の端部が露出した駆動積層部53の側面に外部電極70が形成されて、その外部電極に端部が絶縁体61で覆われていない内部電極52が接続される。

[0004] また、図8は、従来の積層型圧電素子の他の例における断面を示すものである。この例では、圧電体51と内部電極52が交互に積層されているが、内部電極52aは圧

電体51の主面全体には形成されておらず、いわゆる部分電極構造となっている。この部分電極構造の内部電極52を左右互い違いに積層することで、積層型電子部品の側面に形成された外部電極54に内部電極52を一層おきに交互に接続される構造となっている。そして積層型圧電アクチュエータとして使用する場合には、外部電極54にさらにリード線(図示なし)を半田により接続固定する。

[0005] この図8の積層型圧電素子においても、圧電体51と内部電極52が交互に積層された駆動積層部63と、その積層方向における上下の両端部に設けられた不活性保護部62とからなっている。この不活性保護部62に電極層を含まないものが普通であるが、駆動積層部63と不活性保護部62の間で焼成時に収縮の差が生じ、応力が発生したり、クラックが発生したりすることを防止するために、不活性保護部62に駆動積層部63と同様の電極層を積層し、焼成後に起こるクラックや使用時に起こるクラックを防止している(例えば特許文献4参照)

[0006] この積層型圧電素子は、圧電体となるセラミックグリーンシートに内部電極となる内部電極ペーストを所定の電極構造となるようなパターンで印刷し、この内部電極ペーストが塗布されたグリーンシートを複数積層して得られた積層成形体を作製し、これを焼成して、側面に外部電極となる導電性ペーストを焼き付けることによって製造される(例えば、特許文献1参照)。

[0007] また、内部電極52としては、銀とパラジウムの合金が用いられ、さらに、圧電体51と内部電極52を同時焼成するために、内部電極52の金属組成は、銀70重量%、パラジウム30重量%にして用いていた(例えば、特許文献2参照)。

しかしながら、内部電極が金属であるために圧電体との接合力が弱くまた、熱膨張の差による内部応力の発生により内部電極と圧電体との界面でクラックが発生したり、ひどい場合は、積層体が破壊するという問題も発生していた。そこでこの問題を解決するために、例えば特許文献3には、内部電極にセラミック粉末を混ぜ圧電体と内部電極との接合強度を増す方法が示されている。

[0008] 近年においては、小型の圧電アクチュエータで大きな圧力下において大きな変位量を確保するため、より高い電界を印加し、長時間連続駆動させることが行われている。

特許文献1:特開昭61-133715号公報

特許文献2:実開平1-130568号公報

特許文献3:特開平4-299588号公報

特許文献4:特開平9-270540号公報

## 発明の開示

## 発明が解決しようとする課題

[0009] しかしながら、一般的に、圧電体は使用する環境温度により変位量が変化することから、素子温度が上昇することで、圧電アクチュエータの変位量が変化するという問題があった。また、変位量が駆動中に変化することで電圧制御する電源に対する負荷変動が生じ、電源に負担をかけるという問題が生じていた。さらには、変位量の変化率が大いいと、変位量自体が急激に劣化するだけでなく、素子温度上昇が放熱量を上回ると熱暴走現象が生じて素子が破壊するという問題があった。

[0010] この素子温度の上昇を抑制するためには、比抵抗の小さい内部電極を用いることが効果的である。しかしながら、銀-パラジウム合金の比抵抗値は、その組成比によって銀、またはパラジウム単体の比抵抗よりも著しく高い抵抗となり、銀70重量%、パラジウム30重量%の銀-パラジウム合金の組成では、パラジウム単体の1.5倍の抵抗になるという問題があった。しかも、内部電極の焼結密度が低くなれば、さらに高い抵抗になった。

また、従来の積層型圧電アクチュエータでは、内部電極部分が圧電体に比べ柔らかいために圧電体で発生する変位の一部が吸収され、変位のばらつきが大きくなるという問題があった。また、耐久性においても問題があり、長時間の繰り返しの使用後に変位量のばらつきが大きくなるという問題もあった。これら問題は、上記特許文献3に示すように内部電極52にセラミック粉末を混ぜて内部電極52と圧電体51との接合強度向上する方法でも解決することはできなかった。

[0011] 即ち、近年のように、アクチュエータを小型化し、大きな圧力下で大きな変位量を確保するために、より高い電界を印加し、長時間連続駆動させているが、この場合、使用初期において個々のアクチュエータの変位のばらつきが問題となっている。更に、長時間の運転での変位量の変化も問題となっている。

[0012] さらに、積層型圧電アクチュエータは通常の積層型電子部品（例えば積層型セラミックコンデンサ）と異なり、通電に伴い圧電体の磁器が変形するものである。すなわち駆動回数と圧電体の磁器変形回数が同じである。また、近年においては、小型の積層型圧電アクチュエータで大きな圧力下において大きな変位量を確保するためにより高い電界を印加し、長時間連続駆動させることが望まれている。

[0013] しかしながら、特許文献4に示された改善では、高い電圧を印加し、特に長時間連続駆動を行った場合、クラックが発生し、アクチュエータとしての機能が損なわれ、耐久性に問題があった。

そこで本発明は、高電界、高圧力下で使用した場合でも変位のばらつきが小さく、また長期間連続駆動させた場合でも変位量の変化が小さく、信頼性、耐久性に優れた積層型圧電素子及び噴射装置を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

[0014] 以上の目的を達成するために、本発明に係る第1の積層型圧電素子は、圧電体層と内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、その積層体の第1の側面と第2の側面にそれぞれ形成された外部電極とを備え、隣接する内部電極の一方の内部電極は前記第1の側面で前記外部電極に接続され、他方の内部電極は前記第2の側面で前記外部電極に接続された積層型圧電素子において、

$1 \times 10^9$ 回以上の連続駆動後における素子変位量の連続駆動前の素子変位量に対する変化率が5%以内であることを特徴とする。

このように構成された本発明の第1の積層型圧電素子は、連続駆動させても変位量が実質的に変化しないため、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有している。

[0015] また、本発明に係る第2の積層型圧電素子は、圧電体層と内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、その積層体の第1の側面と第2の側面にそれぞれ形成された外部電極とを備え、隣接する内部電極の一方の内部電極は前記第1の側面で前記外部電極に接続され、他方の内部電極は前記第2の側面で前記外部電極に接続された積層型圧電素子において、

$1 \times 10^9$ 回以上の連続駆動後における素子抵抗の連続駆動前の素子抵抗の変化

率が5%以内であることを特徴とする。

以上のように構成された本発明に係る第2の積層型圧電素子は、連続駆動前後の素子抵抗の変化率を5%以内とすることにより、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有している。

[0016] 本発明に係る第1と第2の積層型圧電素子では、連続駆動中の素子変位量の最大変化率が5%以内であることが好ましく、これにより、より効果的に装置の誤作動を防止でき、熱暴走のないより優れた耐久性を持たせることができる。

[0017] 本発明に係る第1と第2の積層型圧電素子では、 $1 \times 10^9$ 回以上の連続駆動後における圧電体層の厚み寸法の連続駆動前の圧電体層の厚み寸法に対する寸法変化率が5%以内であることが好ましい。

このように、圧電体の駆動前後の厚み寸法変化率を5%以内とすることにより、装置の誤作動をより効果的に防止でき、熱暴走のないより優れた耐久性を持たせることができる。

[0018] 本発明に係る第1と第2の積層型圧電素子では、連続駆動中の素子抵抗の最大変化率が5%以内であることが好ましい。

このように、連続駆動中の素子抵抗の最大変化率を5%以内とすることにより、装置の誤作動を効果的に防止でき、さらに、熱暴走のないより優れた耐久性を持たせることができる。

[0019] 本発明に係る第3の積層型圧電素子は、圧電体層と内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、その積層体の第1の側面と第2の側面にそれぞれ形成された外部電極とを備え、隣接する内部電極の一方の内部電極は第1の側面で外部電極に接続され、他方の内部電極は第2の側面で外部電極と接続された積層型圧電素子において、

前記内部電極を貫き、この内部電極を挟んで対向する圧電体層をつなぐ柱を設けたことを特徴とする。

[0020] このように構成された本発明に係る第3の積層型圧電素子は、内部電極中に圧電体間をつなぐ柱を設けることで、変位量のばらつきを小さくすることができる。また、長時間の連続運転後も変位量の変化が小さい、高信頼性で耐久性の向上した圧電ア

クチュエータを提供することができる。従って、例えば、耐久性に優れ、高信頼性の噴射装置を提供することができる。

[0021] 本発明に係る第3の積層型圧電素子では、上記柱と圧電体層の接合部分の径が柱の最大径の50%以上であるものの個数が全体の30%以上を占めることが好ましい。

[0022] また、本発明に係る第3の積層型圧電素子では、上記柱の最小径の平均値が0.2  $\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。

[0023] さらに、本発明に係る第3の積層型圧電素子では、上記柱が1mm当り5～150本存在することが好ましい。

[0024] またさらに、本発明に係る第3の積層型圧電素子では、上記柱と前記圧電体層を構成する圧電体材料との熱膨張差が $3 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$ 以下であることが好ましい。

[0025] また、本発明に係る第3の積層型圧電素子では、上記柱が圧電体材料と同じ材料からなることが好ましい。

[0026] また、以上のように構成された本発明に係る第1～第3の積層型圧電素子では、前記積層体は、その上下に前記圧電体層とダミー層とを交互に積層した不活性保護部を含み、前記ダミー層の外周から前記不活性保護部の側面までの最短距離をA、不活性保護部の幅をBとした時にA/Bが0.01～0.08であることが好ましい。

ここで上述の最短距離Aは保護部を積層方向と垂直な方向に切った面においてそれぞれの長さを測ったものであり、不活性保護部の幅Bはその最短距離Aを測った方向と同一の方向を測った長さとしている。

[0027] このように構成された積層型圧電素子によれば、焼成の収縮を均一にすること及び圧電体層間の適切な接合領域が設けられることにより不活性保護部と駆動積層部との間に生じる応力を低減できるため、高電圧、長時間の連続的な使用においても耐久性を向上させることができ、耐久性に優れた積層型圧電素子を有する噴射装置を提供することができる。

[0028] すなわち、本発明者は、ダミー層の外周から不活性保護部の側面までの最短距離と耐久性に関し研究開発を行った結果、その最短距離と耐久性の間に関係があるのを見出した。つまり、ダミー層の不活性保護部の側面までの最短距離を制御すること

で、耐久性が格段に向上することを見出した。

[0029] このダミー層を有する本発明に係る積層型圧電素子においては、前記ダミー層に金属を含むことが好ましい。

[0030] また、前記ダミー層は前記内部電極と同じ物質からなることが好ましい。

さらに、前記ダミー層が金属酸化物、窒化物及び炭化物のいずれかの無機組成物を含んでいることが好ましく、前記ダミー層が無機組成物を2wt%以上含有することがより好ましい。

[0031] 前記圧電体層の厚みが50  $\mu$  m以上であることが好ましい。

[0032] また、以上のように構成された本発明に係る第1～第3の積層型圧電素子においては、前記内部電極中の金属組成物がVIII族金属および／またはIb族金属を主成分とすることが好ましい。

このように、前記内部電極中の金属組成物がVIII族金属および／またはIb族金属を主成分とすることにより、前記内部電極を高い耐熱性を有する金属組成で形成できるため、焼成温度の高い前記圧電体層との同時焼成が可能になる。

[0033] 内部電極がVIII族金属および／またはIb族金属を主成分とする第1～第3の積層型圧電素子においては、前記内部電極中のVIII族金属の含有量をM1(重量%)、Ib族金属の含有量をM2(重量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足することが好ましい。このようにすると、前記内部電極の比抵抗を小さくできるため、積層型圧電素子を長時間連続駆動させても、前記内部電極部の発熱を抑制することができる。併せて、積層型圧電素子の温度上昇を抑制できるため、素子変位量を安定化することができる。

[0034] さらに、本発明に係る積層型圧電素子においては、前記VIII族金属がNi、Pt、Pd、Rh、Ir、Ru、Osのうち少なくとも1種以上であり、Ib族金属がCu、Ag、Auのうち少なくとも1種以上であることが好ましい。前記内部電極の原料として、このような範囲から選択すると、合金原料および混合粉原料のいずれでも使用することができる。

[0035] さらに、前記VIII族金属がPt、Pdのうち少なくとも1種以上であり、Ib族金属がAg、Auのうち少なくとも1種以上であると、耐熱性および耐酸化性に優れた前記内部電極を形成できる。

[0036] さらに、前記VIII族金属がNiであることにより、駆動時の変位によって生じる応力を緩和することができるとともに、耐熱性に優れた前記内部電極を形成できる。

[0037] さらに、前記Ib族金属がCuであることにより、駆動時の変位によって生じる応力を緩和することができるとともに、熱伝導性に優れた前記内部電極を形成できる。

[0038] さらに、前記内部電極中に金属組成物とともに酸化物、窒化物または炭化物を添加することにより、前記内部電極と前記圧電体の界面の密着強度が増大するため、前記内部電極と前記圧電体の界面における剥離を抑制することができる。

また、前記酸化物が $\text{PbZrO}_3$ – $\text{PbTiO}_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。

[0039] さらに、前記圧電体層はペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。

[0040] また、前記圧電体が $\text{PbZrO}_3$ – $\text{PbTiO}_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分としたことにより、前記圧電体と前記内部電極を同時焼成することができるため、焼成工程を短縮でき、併せて、前記内部電極の比抵抗を小さくできる。

[0041] また、前記積層体の焼成温度が900℃以上1000℃以下であることが好ましい。

[0042] さらに、前記内部電極中の組成のずれが焼成前後で5%以下とすることにより、積層型圧電素子の駆動による伸縮に追従可能とでき、内部電極の剥離を抑制することができる。

[0043] またさらに、本発明に係る第1–第3の積層型圧電素子では、前記積層体の側面に端部が露出する前記内部電極と端部が露出しない前記内部電極とが交互に構成されており、前記端部が露出していない前記内部電極と前記外部電極間の前記圧電体層部分に溝が形成されており、該溝に前記圧電体層よりもヤング率の低い絶縁体が充填されていることが好ましい。

[0044] また、本発明に係る第1–第3の積層型圧電素子において、前記内部電極は空隙を含み、前記内部電極の断面における全断面積に対する空隙の占める面積比が5–70%であることが好ましい。このようにすると、圧電体が電界によって変形する際の内部電極による拘束力を弱くでき、圧電体の変位量を大きくできる。また、空隙により内部電極に加わる応力が緩和され、素子の耐久性が向上するという利点がある。さらに、素子内における熱伝導は内部電極が支配的であるが、内部電極に空隙があると



、素子外部の急激な温度変化による素子内部の温度変化が緩和されるので、熱衝撃に強い素子が得られる。

[0045] 本発明に係る噴射装置は、噴射孔を有する収納容器と、該収納容器に収納された第1〜第3のいずれかの積層型圧電素子と、該積層型圧電素子により前記噴射孔から液体を噴出させるバルブとを具備してなることを特徴とする。

これにより、耐久性の高い噴射装置を提供できる。

### 図面の簡単な説明

[0046] [図1A]本発明の積層型圧電素子を示す斜視図である。

[図1B]本発明の積層型圧電素子における圧電体層と内部電極層との積層状態を示す斜視展開図である。

[図2A]本発明に係る実施の形態2の積層型圧電素子の斜視図である。

[図2B]実施の形態2の積層型圧電素子の側面図である。

[図3]実施の形態2に係る積層型圧電素子の断面の一部を拡大して示す断面図である。

[図4A]外部電極の外面に導電性補助部材を形成した積層型圧電素子の斜視図である。

[図4B]外部電極の外面に導電性補助部材を形成した積層型圧電素子の断面図である。

[図5A]本発明に係る実施の形態3の積層型圧電素子の斜視図である。

[図5B]実施の形態3の積層型圧電素子における圧電層、内部電極層、保護部、及びダミー層の積層状態を示す断面図である。

[図6]本発明の噴射装置を示す側面図である。

[図7]従来の積層型圧電アクチュエータの側面図である。

[図8]従来の積層型圧電素子の断面の一部を示すものである。

### 符号の説明

[0047] 1・・・圧電体、  
2・・・内部電極、  
3・・・絶縁体、

4・・・外部電極、  
13・・・駆動積層部、  
14, 20・・・不活性保護部、  
18・・・柱、  
21・・・ダミー層、  
22・・・柱と圧電体の接合部分、  
31・・・収納容器、  
33・・・噴射孔、  
35・・・ニードルバルブ、  
37・・・燃料通路、  
39・・・シリンダ、  
41・・・ピストン、  
43・・・圧電アクチュエータ。

#### 発明を実施するための最良の形態

[0048] 以下、本発明に係る実施の形態について図面を参照しながら説明する。

##### 実施の形態1.

図1Aは、本発明に係る実施の形態1の積層型圧電素子の構成を示す斜視図であり、図1Bは、圧電体層1と内部電極層2の積層状態を示す斜視展開図である。

本実施の形態1の積層型圧電アクチュエータは、図1A, Bに示すように、複数の圧電体層1と複数の内部電極2とを交互に積層してなる四角柱状の積層体と、その側面に内部電極2と一層おきに接続されるように形成された外部電極4とによって構成されている。

[0049] 具体的には、内部電極2の端部が外部電極4が形成される側面において一層おきに露出するようにして、露出した内部電極2の端部と外部電極4とが導通するように構成している。尚、積層体において、符号14を付して示す部分は、内部電極を含むことなく圧電体層1を積層した不活性保護部である。尚、本実施の形態1の積層型圧電素子を積層型圧電アクチュエータとして使用する場合には、外部電極4にリード線を半田により接続固定し、前記リード線を外部電圧供給部に接続すればよい。

- [0050] 圧電体層1間には内部電極2が配されているが、この内部電極2は、各圧電体層1に所定の電圧を印加し、圧電体層1に逆圧電効果による変位を起こさせるために形成されるものであり、例えば、銀-パラジウム等の金属材料により形成される。
- [0051] また、不活性保護部14は、内部電極2が配されていない複数の圧電体層1の層からなり、不活性保護部14は電圧を印加しても変位しない。
- [0052] そして、本実施の形態1の積層型圧電素子は、連続して繰り返し駆動した場合であっても、駆動前後の素子変位量の変化率が5%以内になるように構成されている。すなわち、本実施の形態1の積層型圧電素子は連続駆動前後の素子変位量の変化率が5%以下に抑えられており、耐久性が極めて高い。
- [0053] ここで、連続駆動前後の素子変位量の変化率とは、積層型圧電素子を作製した後、連続使用する前における変位量に対する、繰り返し駆動した後における変位量の変化の割合をいう。
- [0054] 具体的には、まず、積層型圧電素子を作製した後、連続使用する前に、積層型圧電素子に、ある直流電圧を印加して変位量(初期変位量)を求める。
- 次に、積層型圧電素子に任意の交流電圧を印加して、 $1 \times 10^9$ 回程度連続駆動させた後、初期変位量を測定した時と同一の直流電圧を印加してその時の変位量を求める(連続駆動後変位量)。
- そして、初期変位量に対する連続駆動後変位量の変化率を算出し、その変化率を連続駆動前後の素子変位量の変化率とする。
- [0055] すなわち、連続駆動前後の素子変位量の変化率は、 $\{100 \times (\text{連続駆動後変位量} - \text{初期変位量}) / (\text{初期変位量})\} \%$ で与えられる。
- さらに、本実施の形態1の積層型圧電素子では、連続駆動中の素子変位量の最大変化率が5%以内となるように構成されている。これは、積層型圧電素子の連続駆動中の素子変位量の最大変化率が5%を超えると、積層型圧電素子の駆動中に劣化し、積層型圧電素子の耐久性が低下する場合があるからである。
- [0056] ここで、連続駆動中の素子変位量の最大変化率とは、積層型圧電素子に、ある直流電圧を印加し、その際に起こる変位の量を連続駆動前の変位量(初期状態の変位量)とし、次に、初期状態の変位量を測定するために印加した直流電圧に等しい交

流電圧を積層型圧電素子に印加して、 $1 \times 10^8$ 回程度連続駆動させて各サイクルごとに変位を測定し、その中の変位の最大値を連続駆動中の最大変位量として、その最大変位量が前記連続駆動前の変位量に対して変化した割合で示している。

[0057] ここでは、交流電圧を印加して連続駆動させた場合について説明したが、パルス電圧を用いて連続駆動させてもよく、その場合であっても連続駆動中の素子変位量の最大変化率が5%以内となるように構成されている。例えば、積層型圧電素子に、150Vの直流電圧を印加して、そのときの変位量を初期状態の変位量とし、次に、0Vと150Vのパルス電圧により積層型圧電素子を、 $1 \times 10^8$ 回程度連続駆動させて各パルスごとに変位を測定したとき、本発明に係る素子では、その中の変位の最大値は、5%以内となるように構成されている。

[0058] 尚、初期状態を測定する直流電圧及び交流電圧若しくはパルス電圧は例えば、100V〜200Vの間で任意に設定し得る。

また、本発明の積層型圧電素子では、連続駆動前後の圧電体の厚み寸法変化率が5%以内としてある。これは、積層型圧電素子の連続駆動前後の圧電体の厚み寸法変化率が5%を超えると、駆動前後の積層型圧電素子の寸法自体が変化するため、結果的に変位量が変動するために、積層型圧電素子の劣化が増大し、積層型圧電素子の耐久性が著しく低下するためである。

[0059] 尚、圧電体の厚み寸法は、積層型圧電素子の断面や側面における圧電体をSEMで観察することにより測定することができる。

ここで、圧電体の駆動前後の厚み寸法変化率とは、積層型圧電素子に任意の交流電圧を印加し、 $1 \times 10^9$ 回程度連続駆動させた後の積層型圧電素子の積層方向における圧電体の厚み寸法が、連続駆動前の圧電体の厚み寸法に対して変化した割合を示している。

[0060] また、圧電体の厚み寸法変化率は、駆動前の積層型圧電素子の側面をSEM等の顕微鏡で観察して、任意の10箇所の圧電体の厚み寸法を測定して平均値を算出し、駆動後、同一箇所の厚み寸法を測定して平均値を算出することにより求めることができる。

[0061] また、本実施の形態1の積層型圧電素子では、積層型圧電素子の連続駆動前後

の素子抵抗の変化率が5%以内としてある。これは、積層型圧電素子の連続駆動前後の素子抵抗の変化率が5%を超えると、積層型圧電素子の劣化が増大し、積層型圧電素子の耐久性が著しく低下するためである。

[0062] ここで、連続駆動前後の素子抵抗の変化率とは、積層型圧電素子に任意の直流電圧を印加し、その際に測定された素子の抵抗値を連続駆動前の素子抵抗とし、次に、積層型圧電素子に任意の交流電圧を印加して、 $1 \times 10^9$ 回程度連続駆動させた後の素子の抵抗値を連続駆動後の素子抵抗として、該連続駆動後の素子抵抗が前記連続駆動前の素子抵抗に対して変化した割合を示している。

[0063] さらに、実施の形態1の積層型圧電素子は連続駆動中の素子抵抗の最大変化率が5%以内としてある。これは、積層型圧電素子の連続駆動中の素子抵抗の最大変化率が5%を超えると、積層型圧電素子の駆動中に劣化が増大し、積層型圧電素子の耐久性が低下する場合があるからである。

[0064] ここで、連続駆動中の素子抵抗の最大変化率とは、積層型圧電素子に任意の直流電圧を印加し、その際に測定された素子の抵抗値を連続駆動前の素子抵抗とし、次に、積層型圧電素子に任意の交流電圧を印加して、 $1 \times 10^8$ 回程度連続駆動させている際に変化した素子抵抗の最大抵抗値を連続駆動中の素子抵抗として、該連続駆動中の素子抵抗が前記連続駆動前の素子抵抗に対して変化した割合を示している。

[0065] 上記に示したような本発明の積層型圧電素子において、連続駆動前後や連続駆動中の素子変化量、そして、連続駆動前後の圧電体の厚み寸法変化率、そして、連続駆動前後や連続駆動中素子抵抗の変化率を5%以内にするために以下のようにすればよい。

[0066] これまで、素子変位量、圧電体の厚み寸法変化率、または素子抵抗の変化を抑制する手段としては、連続駆動中の素子温度を一定に保つ方法や、素子温度に応じて駆動電圧を細かく制御する方法が用いられてきた。具体的には、素子温度をモニターしながら駆動電圧を制御したり、素子周辺温度を制御するために、放熱を積極的に行うヒートシンクを取り付けたりした。

[0067] これに対して、本発明に係る実施の形態1においては、駆動により発生する素子自

身の発熱を抑制することにより、連続駆動中の素子温度を制御した(素子温度の変化を抑制した)。前記素子温度を制御する(素子温度の変化を抑制する)ためには、圧電体層1の誘電損失( $\tan \delta$ )を小さくしたり、素子抵抗を小さくする必要がある。

[0068] また、分極の度合いにより圧電体の厚み寸法が変化することから、連続駆動前後の圧電体の厚み寸法変化率を一定に保つには、連続駆動前後の分極状態が同一となるように、圧電体の誘電損失( $\tan \delta$ )を小さくする必要がある。さらに、圧電体の温度がキュリー点よりも高い温度になってしまうと、駆動前の分極状態と駆動中の分極状態が変化してしまい、連続駆動前後の圧電体の厚み寸法や変位量が増減しやすくなるため、素子温度の上昇を抑制する必要がある。そこで、電極材料の比抵抗を小さくすることで駆動時に素子自身の温度上昇を抑止することが必要である。

[0069] 例えば、圧電体層1を $\text{PbZrO}_3\text{--PbTiO}_3$ 等のペロブスカイト型酸化物を主成分として形成する場合、誘電損失( $\tan \delta$ )を小さくするためには、積層体を酸素過剰雰囲気中で焼成する方法や、また、積層体の焼成後の処理において、最大焼成温度からの降温速度を遅くする方法がある。具体的には、降温速度を $600^\circ\text{C}/\text{時}$ 以下にすればよく、好ましくは $300^\circ\text{C}/\text{時}$ 以下にすればよい。また、誘電損失( $\tan \delta$ )の値としては、1.5%未満であればよく、好ましくは0.5%以下にすればよい。

[0070] また、素子抵抗を小さくするには、内部電極2の材料として、比抵抗値が小さい組成の材料を選択するとともに、電気伝導の経路を確保した緻密な構造にするとよい。

さらに、圧電体層1を構成する材料の変位量の温度特性が、使用温度に関係なく一定であることが望ましいので、連続駆動した時における素子の温度変化範囲において、変位量が小さい圧電体材料が好ましい。

またさらに、効率良く素子内部の熱を素子の外側に放出するために、熱が伝わる主要な経路となる内部電極2を熱伝導特性の優れた組成にすることが好ましい。

[0071] 次に、本実施の形態1の積層型圧電素子の製造方法を説明する。

本製造方法においては、まず、 $\text{PbZrO}_3\text{--PbTiO}_3$ 等からなるペロブスカイト型酸化物の圧電セラミックスの仮焼粉末と、アクリル系、ブチラール系等の有機高分子から成るバインダーと、DBP(フタル酸ジオチル)、DOP(フタル酸ジブチル)等の可塑剤とを混合してスラリーを作製する。そして、該スラリーを用いて、周知のドクターブレード

ド法やカレンダーロール法等のテープ成型法により圧電体層1となるセラミックグリーンシートを作製する。

[0072] 次に、銀-パラジウム等の内部電極を構成する金属粉末にバインダー、可塑剤等を添加混合して導電性ペーストを作製する。この導電性ペーストを前記各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1〜40  $\mu\text{m}$ の厚みに印刷する。

そして、上面に導電性ペーストが印刷されたグリーンシートを複数積層し、その積層体を所定の温度で脱バインダーを行った後、900〜1200℃で焼成することによって積層体を作製する。

[0073] 尚、積層体の製法は、上記製法に限定されるものではなく、複数の圧電体層1と複数の内部電極2とを交互に積層してなる積層体を作製できれば、どのような製法であってもよい。

[0074] 尚、積層体は、その側面に内部電極2の端部が1層おきに露出されるように作製される。また、端部が露出していない内部電極2と外部電極4間の圧電体部分に溝を形成して、この溝内に、圧電体層1よりもヤング率の低い、樹脂またはゴム等の絶縁体を形成するようにしてもよい。ここで、前記溝は内部ダイシング装置等で積層体の側面に形成される。

[0075] 次に、ガラス粉末に、バインダーを加えて銀ガラス導電性ペーストを作製し、これをシート状に成形して、乾燥し(シートの生密度が6〜9g/cm<sup>3</sup>になるように制御し、溶媒を飛散させる。)、このシートを、柱状積層体の外部電極形成面に転写する。そして、ガラスの軟化点よりも高い温度、且つ銀の融点(965℃)以下の温度で、且つ焼成温度(℃)の4/5以下の温度で焼き付けを行う。これにより、銀ガラス導電性ペーストを用いて作製したシート中のバインダー成分が飛散消失し、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極4が形成される。

外部電極4を構成する導電材はアクチュエータの伸縮によって生じる応力を十分に吸収するという点から、ヤング率の低い銀、若しくは銀が主成分の合金が望ましい。

[0076] また、前記銀ガラス導電性ペーストの焼き付け温度は、有効なネック部が形成されるように銀ガラス導電性ペースト中の銀と内部電極2を拡散接合させ、また、外部電極4中の空隙を効果的に残存させ、さらには、外部電極4と柱状積層体側面とを部分

的に接合させるために、550〜700℃が望ましい。また、銀ガラス導電性ペースト中のガラス成分の軟化点は、500〜700℃が望ましい。

[0077] 焼き付け温度が700℃より高い場合には、銀ガラス導電性ペーストの銀粉末の焼結が進みすぎ、有効な3次元網目構造をなす多孔質導電体を形成することができない。その結果、外部電極4が緻密になりすぎてしまい、外部電極4のヤング率が高くなりすぎるおそれがある。外部電極4のヤング率が高くなると、駆動時の応力を十分に吸収することができないので、外部電極4が断線してしまう可能性がある。好ましくは、ガラスの軟化点の1.2倍以内の温度で焼き付けを行う。

[0078] 一方、焼き付け温度が550℃よりも低い場合には、内部電極2端部と外部電極4の間で十分に拡散接合がなされないために、ネック部が形成されず、駆動時に内部電極2と外部電極4の間でスパークを起こしてしまう可能性がある。

なお、銀ガラス導電性ペーストのシートの厚みは、圧電体層1の厚みよりも薄いことが望ましい。さらに好ましくは、アクチュエータの伸縮に追従するという点から、50  $\mu$  m以下がよい。以上の外部電極の一4の形成により実施の形態1の積層型圧電素子は完成する。

[0079] また、側面に内部電極に達する溝を形成したものでは、外部電極4を形成した積層体をシリコンゴム溶液に浸漬するとともに、シリコンゴム溶液を真空脱気することにより、積層体の溝内部にシリコンゴムを充填し、その後シリコンゴム溶液から積層体を引き上げ、積層体の側面にシリコンゴムをコーティングする。その後、溝内部に充填、及び柱状積層体の側面にコーティングした前記シリコンゴムを硬化させることにより、本発明の積層型圧電素子が完成する。

[0080] そして、外部電極4にリード線を接続し、該リード線を介して一対の外部電極4に0.1〜3kV/mmの直流電圧を印加し、積層体を分極処理することによって、本発明の積層型圧電素子を利用した積層型圧電アクチュエータが完成する。この積層型圧電アクチュエータにおいて、リード線を外部の電圧供給部に接続し、リード線及び外部電極4を介して内部電極2に電圧を印加すれば、各圧電体層1は逆圧電効果によって大きく変位する。このように構成された実施の形態1の積層型圧電アクチュエータは、例えば、エンジンに燃料を噴射供給する自動車用燃料噴射弁に用いることがで



きる。

[0081] 実施の形態2.

図2Aは、本発明に係る実施の形態2の積層型圧電アクチュエータの構成を示す斜視図であり、図2Bは、その側面図である。また、図3は、内部電極2部分の断面図である。

[0082] 本実施の形態2の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータは、図2A、Bに示すように、圧電体層1と内部電極2とを交互に積層してなる四角柱状の積層体10の側面において、内部電極2の端部を一層おきに絶縁体3で被覆し、絶縁体3で被覆していない内部電極2の端部に接続されるように外部電極4を設けている。外部電極4は、銀を主成分とする導電材とガラスからなる多孔質導電体であって、各外部電極4にはリード線6が接続固定されている。

[0083] ここで、特に、本実施の形態2の積層型圧電アクチュエータでは、図3に示すように、内部電極2を貫く複数の柱18が設けられており、その柱18によって対向する2つの圧電体層1をつないでいることを特徴としている。このように、圧電体層1間に例えば、セラミックのように硬い物質で柱18を形成することにより、内部電極2の剛性が向上し、内部電極2で起こる変位量の吸収が抑制できるため、安定した変位量が得られる。その結果、製品ごとの変位量のばらつきを小さくでき、かつ各製品の信頼性を向上することができる。また、長時間の使用後の変位量の変化も小さくなり、耐久性を向上することができる。

[0084] また、図3に示すように柱18と圧電体層1との接合部分22の径Bが柱18の最大径Aの50%以上であるような柱18の個数が全体の30%以上を占めることが好ましい。これは、このようにすると、より安定した変位量が得られるからである。すなわち、柱18と圧電体層1との接合部分22の径Bが柱18の最大径Aの50%以上であるような柱18の個数が30%以上を占めることにより、柱18と圧電体層1の強度が大きくなり、また剛性も大きくなる。これにより、内部電極2で起こる変位量の吸収が少なくなり、変位量が安定化するためである。その結果、各製品の変位量のばらつきをより抑えることができ、より信頼性を向上させることができる。また、長時間の使用後の変位量の変化も小さくなり、耐久性を向上させることができる。同様の理由から、柱18と圧電体層

1との接合部分22の径Bが柱18の最大径Aの50%以上である柱18の個数が、柱18全体の50%以上であることがより好ましい。

[0085] 最大径A及び径Bは、以下のように測定される。まず、図3のように積層型圧電素子の内部電極2付近の断面写真において、各柱18について最大径Aと圧電体層1との接合部分の径Bを測定する。その測定結果をもとに、 $(B/A) \times 100$ の値を計算をして、個々の柱18に関して、柱18の最大径Aと柱18と圧電体層1との接合部分22の径Bの割合を求める。そして、その値が50%以上のものの個数が測定した数の何%あるかを計算する。このようなことを、10箇所行って平均を取る。

[0086] また、本実施の形態2では、柱18の最小径の平均値が $0.2 \mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、より好ましくは $0.3 \mu\text{m}$ 以上とする。このようにすることで、柱18の強度を高くでき、破壊しにくくできる。従って、変位量のばらつきが抑制され、連続使用後の変位量の変化も小さくでき、信頼性と耐久性が向上する。

[0087] また、本発明の積層型圧電素子では、内部電極2付近の断面において、柱18が1mm当り5〜150本存在することが好ましく、より好ましくは、10〜100本とする。これは、柱18の数を上記のようにすることで、剛性を高めることができ、変位量のばらつきの小さい信頼性に優れた積層型圧電素子が得られるためである。柱18の数が5本より少ないと柱を設けることによる効果が小さくなり、一方、柱18の数が100本より多いと内部電極2の抵抗が大きくなり電極が加熱するなど電極としての機能が低下する。

[0088] さらに、柱18と圧電体層1との熱膨張差が $3 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 以下、特に $2 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ であることが好ましい。これにより、圧電体層1と柱18の間での内部応力が小さくなり、界面での接合強度を大きくでき、耐久性を向上させることができる。圧電体層1にPZTを用いた場合、熱膨張差が $3 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 以下の柱18の材料として、PZT、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 等を用いることができる。

[0089] 更には、柱18が圧電体層1とが同じ材料から成ることが好ましい。これにより、柱18と圧電体層1との間で発生する内部応力は、更に小さくなり、界面での接合強度が大きくなり耐久性が向上できる。

[0090] 前記柱18は、予め内部電極2中に柱18を成す材料の粉末を混合しておき、焼成工程において、昇温中に焼成最高温度の80%以上の温度で、一回以上保持するこ

とによって形成することができる。つまり、従来の焼成とは異なり、脱脂をした後に、最高焼成温度の80%以上で一旦保持することにより、内部電極2に混合された柱18を成す材料の粉末が周囲の金属組成物の影響を受け、粒成長を生じやすい状態となる。その後、最高焼成温度で焼成することで、圧電体層1の間を連結するように粒成長が起こり、内部電極2を貫き、内部電極2を挟んで対向する圧電体層1をつなぐ柱18を形成することができる。内部電極2に添加する柱18の材料粉末の添加量は、5〜40重量%が適当である。40重量%よりも多くなると電極の抵抗が上がり過ぎ、加熱する可能性があり、また5重量%より小さいと柱を十分に設けることができず、内部電極の剛性を向上する効果が小さくなり、信頼性及び耐久性を十分に向上させることができなくなる。

[0091] 本実施の形態2の積層型圧電素子の製造方法について以下に説明する。

最初に、実施の形態1と同様にして、圧電体層1となるセラミックグリーンシートを作製する。

次に、例えば、銀-パラジウム等の内部電極を構成する金属粉末に柱18の材料としてPZT、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 等のセラミック粉末をいずれか一種以上とバインダー、可塑剤等を添加混合して導電性ペーストを作製する。この導電性ペーストを前記各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1〜40  $\mu\text{m}$ の厚みに印刷する。

[0092] そして、上面に導電性ペーストが印刷されたグリーンシートを複数積層し、この積層体を所定の温度で脱バインダー処理を行った後、最高温度の80%以上の温度で一旦保持した後、最高温度である900〜1200℃で焼成する。最高温度の80%以上の保持時間は0.25hより長い方が好ましい。更に2段以上のステップを設けても良い。例えば、最高保持温度の80%と90%で保持するようにして、多段のパターンで加熱しても良い。このように、柱の成長を促すためには、最高保持温度の80%以上で一旦保持することが必要である。これにより、対向する圧電体を強固に結合することができる。最高温度を900℃以上1200℃以下にするのは、900℃より低温では、緻密な圧電体を作製することができず、1200℃を超えると焼成時の電極の収縮と圧電体の収縮のずれを起因とした応力が大きくなり、連続駆動時にクラックが発生する理

由からである。

[0093] その後、積層型圧電素子の側面に端部が露出する内部電極が1つ置きに表れるようにして、該端部が露出していない内部電極2と側面間に溝を形成して、この溝内に、圧電体層1よりもヤング率の低い、例えば樹脂またはゴム等の絶縁体を形成する。この溝3は、ダイシング装置等により形成することができる。

[0094] 次に、実施の形態1と同様にして、外部電極4を形成する。

そして、外部電極4を形成した積層体10をシリコンゴム溶液に浸漬するとともに、シリコンゴム溶液を真空脱気することにより、積層体10の溝内部にシリコンゴムを充填し、その後シリコンゴム溶液から積層体10を引き上げ、積層体10の側面にシリコンゴムをコーティングする。その後、溝内部に充填、及び積層体10の側面にコーティングした前記シリコンゴムを硬化させる。

その後、外部電極4にリード線を接続することにより本発明の積層型圧電素子が完成する。

[0095] そして、リード線を介して一对の外部電極4に0.1〜3kV/mmの直流電圧を印加し、積層体10を分極処理することによって、製品としての積層型圧電アクチュエータが完成する。この完成品において、リード線を外部の電圧供給部に接続し、リード線及び外部電極4を介して内部電極2に電圧を印加すれば、各圧電体層1は逆圧電効果によって大きく変位し、これによって例えばエンジンに燃料を噴射供給する自動車用燃料噴射弁として機能する。

[0096] 以上のように構成された積層型圧電素子は、内部電極2の剛性が高くなり、また、接合強度が向上するので、内部電極での変位量の吸収を少なくする。更に連続駆動させても、デラミネーションが発生しないので、変位量の変化を小さくできる。ゆえに、誤作動のない、高い信頼性を有する圧電アクチュエータを提供することができる。

本実施の形態2の積層型圧電素子は、以上説明した具体例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲であれば種々の変更は可能である。

[0097] 実施の形態3.

図5A、Bは、本発明に係る実施の形態3の積層型圧電素子を示すもので、図5Aは斜視図、図5Bは、圧電層、内部電極層、保護部、及びダミー層の積層状態を示す断

面図である。

[0098] 本実施の形態3の積層型圧電素子は、図5A, Bに示すように、圧電体層1と内部電極2とを交互に積層してなる積層体30の一对の対向する側面にそれぞれ外部電極4が設けられ、各外部電極4に内部電極2が一層おきに導通するように構成されている。そして、本実施の形態3の積層型圧電素子において、積層体30は、駆動積層部13の上下に圧電体層1とダミー層21が交互に積層された不活性保護部20が積層されてなる。

[0099] 特に、本実施の形態3の積層型圧電素子では、積層体30において積層方向と垂直な横断面において、ダミー層21の外周と積層体の側面までの最短距離をA、その最短距離となる方向における不活性保護部20の幅をBとした時に、 $A/B$ が0.01〜0.08となるように構成されている。すなわち、実施の形態3に関する発明は、上述のように最短距離A、不活性保護部20の幅Bを設定することにより、耐久性を向上させることができ、長時間使用しても特性の変化がない信頼性の高い積層型圧電素子を得ることができるのを見出して完成させたものである。

[0100]  $A/B$ が0.01より小さいと、積層される圧電体層1同士の接合部分の領域が小さくなりすぎ、高電圧、長時間の連続使用中に、ダミー層21部分において変形により受ける応力が圧電体間の接合力より大きくなり、デラミネーションが発生しやすい。

[0101] 一方、 $A/B$ が0.08より大きいと不活性保護部20と駆動積層部13との焼成時の収縮差や収縮のプロファイルが異なり、両者の間で大きな歪を生じ、圧電体間の接合力より大きくなり、最悪の場合、焼成後にデラミネーションが生じたり、長時間の使用でデラミネーションが生じたりする問題が発生する。

[0102] 本発明では、 $A/B$ の値は、0.02〜0.07であることが好ましい。更に0.03〜0.06であることがより好ましい。このようにすることで不活性保護部20のデラミネーションが発生しにくくなり、耐久性を向上させることができる。

また、ダミー層21に金属を含むことが好ましい。これにより、圧電体層1間に発生した応力を緩和でき、その結果、長時間の使用に対しても使用可能となり耐久性が向上する。金属としては、Ag、Cu、Ni、Pd等、周期律表にある金属元素単体でも良いし、それらのうち1つ以上の合金でも良い。さらにダミー層にガラスを含ませても良い。

[0103] また、ダミー層21が内部電極2と同じ物質からなることが好ましい。このことにより、不活性保護部20と駆動積層部13との焼成の挙動はほぼ同じとなり、両者間に発生する応力を抑えられ、デラミネーションを減少することができ、耐久性の向上した圧電素子を得ることができる。

[0104] また、圧電体層1の厚みは50  $\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。このように厚くすることで、発生する応力に耐えることができ、破壊を防止できる。

また、ダミー層21が無機組成物として、金属酸化物、窒化物、炭化物のいずれか1又は2以上を含むことが好ましい。ダミー層21に無機組成物を入れることによって、圧電体層1間に無機組成物の架橋が生じ、焼成や使用時の応力に対し強くなり、デラミネーションを生じ難くするので、耐久性が向上する。尚、無機組成物としては、PZT、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 、TiN、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、AlN、SiC及びTiC等を用いることができる。

[0105] 更に、ダミー層21が無機組成物を2wt%以上含有することが好ましい。これにより圧電体層1間の架橋が十分なものになり、圧電体層1間の接合強度が増し、デラミネーションを減少させ、耐久性を向上できる。

次に、本発明に係る実施の形態3の積層型圧電素子の製法を説明する。

本方法では、まず、実施の形態1と同様にして、圧電体層1となるセラミックグリーンシートを作製する。

次にこのグリーンシートを適当な大きさにカットし、A/Bを制御するために枠に固定する。

[0106] 次に、銀-パラジウム等の内部電極2を構成する金属粉末にバインダー、可塑剤等を添加混合して導電性ペーストを作製し、これを前記各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1〜40  $\mu\text{m}$ の厚みに印刷し駆動積層部13用のグリーンシートを用意する。

次に、同様に銀-パラジウム等を含むダミー層をグリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1〜40  $\mu\text{m}$ 印刷し、不活性保護部20用のグリーンシートを用意する。印刷時には、焼成収縮を考慮し、A/Bが所定の値となるように制御し印刷する。

[0107] そして、A/Bを制御するために、上面に導電性ペーストが印刷された駆動積層部

13用のグリーンシートと不活性保護部20用のグリーンシートを駆動積層部13の上下に不活性保護部20がくるように複数積層し、同時に圧力をかけて密着させる。このように、グリーンシートを枠に固定し、不活性保護部20と駆動積層部13を同時に密着させることによって、ダミー層21の外周から不活性保護部20の側面までの最短距離Aを制御することができる。

[0108] この後、グリーンシートを適当な大きさにカットし、所定の温度で脱バインダーを行った後、900〜1200℃で焼成することによって積層型圧電素子が作製される。

なお、積層型圧電素子は、上記製法によって作製されるものに限定されるものではなく、ダミー層21の外周から不活性保護部20の側面までの最短距離Aを制御することができる方法であれば、どのような製法によって形成されても良い。

その後、積層型圧電素子の側面に端部が露出する内部電極2と端部が露出しない内部電極2とを交互に形成して、端部が露出していない内部電極2と外部電極4間の圧電体層1部分に溝3を形成して、この溝3内に、圧電体層1よりもヤング率の低い、樹脂またはゴム等の絶縁体を形成する。ここで、前記溝3は内部ダイシング装置等で駆動積層部13の側面に外部電極4は構成する導電材は積層型圧電素子の伸縮によって生じる応力を十分に吸収するという点から、ヤング率の低い銀、若しくは銀が主成分の合金が望ましい。

そして、実施の形態1と同様にして、外部電極4を形成する。

[0109] 次に、外部電極4を形成した駆動積層部13をシリコンゴム溶液に浸漬するとともに、シリコンゴム溶液を真空脱気することにより、駆動積層部13の溝3内部にシリコンゴムを充填し、その後シリコンゴム溶液から駆動積層部13を引き上げ、駆動積層部13の側面にシリコンゴムをコーティングする。その後、溝3内部に充填、及び柱状駆動積層部13の側面にコーティングした前記シリコンゴムを硬化させることにより、本発明の積層型圧電素子が完成する。

[0110] そして、外部電極4にリード線6を接続し、該リード線6を介して一対の外部電極4に0.1〜3kV/mmの直流電圧を印加し、駆動積層部13を分極処理することによって、本発明の積層型圧電素子を利用した積層型圧電アクチュエータが完成し、リード線6を外部の電圧供給部に接続し、リード線及び外部電極4を介して内部電極2に電

圧を印加させれば、各圧電体層1は逆圧電効果によって大きく変位し、これによって例えばエンジンに燃料を噴射供給する自動車用燃料噴射弁として機能する。

[0111] 以下、実施の形態1〜3の積層型圧電素子の内部電極、外部電極その他の構成のより好ましい形態について説明する。

[0112] <内部電極>

本発明において、内部電極2中の金属組成物は、VIII族金属および／またはIb族金属を主成分とすることが望ましい。それらの金属組成物は高い耐熱性を有するため、焼成温度の高い圧電体層1と内部電極2を同時焼成することも可能である。

[0113] また、内部電極2中の金属組成物がVIII族金属の含有量をM1(重量%)、Ib族金属の含有量をM2(重量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足する金属組成物を主成分とすることが好ましい。これは、VIII族金属が15重量%を超えると、内部電極2の比抵抗が大きくなり、積層型圧電素子を連続駆動させた場合、内部電極2が発熱する場合があるからである。また、内部電極2中のIb族金属の圧電体層1へのマイグレーションを抑制するために、VIII族金属が0.001重量%以上15重量%以下とすることが好ましい。また、積層型圧電素子の耐久性を向上させるという点では、0.1重量%以上10重量%以下が好ましい。また、熱伝導に優れ、より高い耐久性を必要とする場合は0.5重量%以上9.5重量%以下がより好ましい。また、さらに高い耐久性を求める場合は2重量%以上8重量%以下がさらに好ましい。

[0114] ここで、Ib族金属を85重量%以上が好ましいとしたのは、Ib族金属が85重量%未満になると、内部電極2の比抵抗が大きくなり、積層型圧電素子を連続駆動させた場合、内部電極2が発熱する場合があるからである。また、内部金属12中のIb族金属の圧電体層1へのマイグレーションを抑制するために、Ib族金属を85重量%以上99.999重量%以下とすることが好ましい。また、積層型圧電素子の耐久性を向上させるという点では、Ib族金属を90重量%以上99.9重量%以下とすることが好ましい。また、より高い耐久性を必要とする場合は、Ib族金属を90.5重量%以上99.5重量%以下とすることがより好ましい。また、さらに高い耐久性を求める場合は、Ib族金属を92重量%以上98重量%以下とすることがさらに好ましい。



- [0115] 上記の内部電極2中の金属成分の重量%を示すVIII族金属、Ib族金属はEPMA (Electron Probe Micro Analysis) 法等の分析方法で特定できる。
- [0116] さらに、本発明の内部電極2中の金属成分は、VIII族金属がNi、Pt、Pd、Rh、Ir、Ru、Osのうち少なくとも1種以上であり、Ib族金属がCu、Ag、Auのうち少なくとも1種以上であることが好ましい。これは、近年における合金粉末合成技術において量産性に優れた金属組成であるからである。
- [0117] さらに、内部電極2中の金属成分は、VIII族金属がPt、Pdのうち少なくとも1種以上であり、Ib族金属がAg、Auのうち少なくとも1種以上であることが好ましい。これにより、耐熱性に優れ、比抵抗の小さな内部電極2を形成できる可能性がある。
- [0118] さらに、内部電極2中の金属成分は、VIII族金属がNiであり、Ib族金属がCuであることが好ましい。これにより、耐熱性および熱伝導性に優れた内部電極2を形成できる可能性がある。
- [0119] さらに、内部電極2中には、金属組成物とともに酸化物、窒化物または炭化物を添加することが好ましい。これにより、内部電極2と圧電体層1を強固に結合でき、積層型圧電素子の耐久性が向上する。
- [0120] 前記酸化物が $\text{PbZrO}_3$ – $\text{PbTiO}_3$  からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。尚、添加された酸化物等の含有量は、積層型圧電素子の断面SEM像における内部電極中の組成の面積比から算出できる。
- [0121] また、内部電極2中の組成のずれが焼成前後で5%以下であることが好ましい。これは、内部電極2中の組成のずれが焼成前後で5%を超えると、内部電極2中の金属材料が圧電体層1へのマイグレーションが多くなり、積層型圧電素子の駆動による伸縮に対して、内部電極2が追従できなくなる可能性がある。また、電極中の組成のずれが焼成前後で5%以下であると、電極が硬くなることを抑制することができる。
- [0122] ここで、内部電極2中の組成のずれとは、内部電極2を構成する元素が焼成によって蒸発、または圧電体層1へ拡散することにより内部電極2の組成が変わる変化率を示している。
- [0123] さらに、本発明に係る積層型圧電素子において、前記内部電極は空隙を含み、前記内部電極の断面における全断面積に対する空隙の占める面積比が5–70%であ

ることが好ましい。このようにすると、圧電体が電界によって変形する際の内部電極による拘束力を弱くでき、圧電体の変位量を大きくできる。また、空隙により内部電極に加わる応力が緩和され、素子の耐久性が向上するという利点がある。さらに、素子内における熱伝導は内部電極が支配的であるが、内部電極に空隙があると、素子外部の急激な温度変化による素子内部の温度変化が緩和されるので、熱衝撃に強い素子が得られる。

[0124] 以上の実施の形態1〜3において、内部電極2は空隙を有し、内部電極2の断面における全断面積に対する空隙の占める面積比(以下、空隙率という。)が5〜70%であることが好ましい。

[0125] このように、空隙を含む内部電極2を用いて積層型圧電体素子を構成することにより、耐久性の高い積層型圧電素子が得られる。内部電極2における空隙率が5%より小さいと圧電体の変位に対する拘束力が強くなり、空隙の存在による効果が小さくなる。また、内部電極2における空隙率が70%より大きいと、内部電極2の導電率が小さくなりかつ強度が低下するので好ましくない。素子の耐久性を高めるためには、内部電極2の空隙率は7〜70%であることがより好ましく、さらに好ましくは内部電極2の空隙率を10〜60%とすることで高い変位量を確保しかつ高い耐久性を得ることができる。

[0126] ここで、内部電極2の空隙率とは、上述したように、内部電極2の断面における全断面積に対する空隙の占める面積比をいうが、具体的には以下のようにして求めることができる。

[0127] すなわち、積層型圧電体素子を積層方向と平行に切断し、その縦断面に露出した一内部電極2における全断面積と空隙が占める空隙占有面積を、例えば、顕微鏡観察により求める。そして、その面積比から内部電極2の空隙率( $(\text{空隙占有面積} / \text{全断面積}) \times 100$ )を算出する。

[0128] また、空隙を含む内部電極2は以下のようにして作製することができる。

まず、内部電極2を構成する金属粉末として、焼成後に内部電極2に空隙ができるように、融点の異なる2種類以上の材料を用いる。この際、目的に応じて金属材料として合金を用いることもできる。

[0129] そして、内部電極2を構成する金属粉末中、最も融点が高い金属の融点以上で、最も融点が高い金属の融点以下の温度で仮焼する。このような温度で仮焼すると、内部電極2を構成する金属粉末中、その融点以上となって溶けた金属又は合金が毛管現象により、溶けていない金属の隙間に移動し、溶けた金属のあった場所に空隙が形成される。この方法では、内部電極2を構成する2種以上の金属粉末の混合割合、及び温度を調整することにより、内部電極2の空隙率を所望の割合に設定できる。

。

[0130] 尚、内部電極2の空隙は、例えば、内部電極2を形成するために用いる導電性ペーストを調整する際に金属粉末間にできる僅かな隙間、または導電性ペーストに含まれるバインダーが焼失した後に生じた隙間等を利用して形成してもよい。

[0131] また、内部電極2を構成する材料と濡れ性の悪い物質を内部電極用の導電性ペーストに添加したり、内部電極用導電性ペーストが印刷される圧電体グリーンシートの表面に内部電極2を構成する材料と濡れ性の悪い物質をコートすることで内部電極2中に空隙を形成することもできる。ここで、内部電極2を構成する材料と濡れ性の悪い材料として、例えば、BNが挙げられる。

[0132] <圧電体層1>

本発明において、圧電体層1がペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。これは、例えば、チタン酸バリウム( $\text{BaTiO}_3$ )を代表とするペロブスカイト型圧電セラミックス材料等で形成されると、その圧電特性を示す圧電歪み定数 $d_{33}$ が高いことから、変位量を大きくすることができ、さらに、圧電体層1と内部電極2を同時に焼成することもできる。上記に示した圧電体層1としては、圧電歪み定数 $d_{33}$ が比較的高い $\text{PbZrO}_3\text{--PbTiO}_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。

[0133] さらに、焼成温度が900℃以上1000℃以下であることが好ましい。これは、焼成温度が900℃以下では、焼成温度が低いと焼成が不十分となり、緻密な圧電体層1を作製することが困難になる。また、焼成温度が1000℃を超えると、焼成時の内部電極2の収縮と圧電体層1の収縮のずれから起因した応力が大きくなり、積層型圧電素子の連続駆動時にクラックが発生する可能性があるからである。

[0134] <内部電極と外部電極の間の接続及び絶縁>

また、本発明の積層型圧電素子の側面に端部が露出する内部電極2と端部が露出しない内部電極2とが交互に構成されており、前記端部が露出していない内部電極2と外部電極4間の圧電体部分に溝が形成されており、この溝内に、圧電体層1よりもヤング率の低い絶縁体が形成されていることが好ましい。これにより、このような積層型圧電素子では、駆動中の変位によって生じる応力を緩和することができることから、連続駆動させても、内部電極2の発熱を抑制することができる。

[0135] <外部電極4>

本発明において、外部電極4は、図4A, Bに示すように外部電極4が3次元網目構造をなす多孔質導電体からなるのが望ましい。外部電極4が3次元網目構造をなす多孔質導電体で構成されていなければ、外部電極4はフレキシブル性を有しないため、積層型圧電アクチュエータの伸縮に追従できなくなるので、外部電極4の断線や外部電極4と内部電極2の接点不良が生じる場合がある。ここで、3次元網目構造とは、外部電極4にいわゆる球形のボイドが存在している状態を意味するのではなく、外部電極4を構成する導電材粉末とガラス粉末が、比較的低温で焼き付けられている為に、焼結が進みきらずにボイドがある程度連結した状態で存在し、外部電極4を構成する導電材粉末とガラス粉末が3次的に連結、接合した状態を示唆している。

[0136] あるいは、外部電極4中の空隙率が30〜70体積%であることが望ましい。ここで、空隙率とは、外部電極4中に占める空隙4aの比率である。これは、外部電極4中の空隙率が30体積%より小さければ、外部電極4が積層型圧電アクチュエータの伸縮によって生じる応力に耐えきれずに、外部電極4が断線する可能性がある。また、外部電極4中の空隙率が70体積%を超えると、外部電極4の抵抗値が大きくなるため、大電流を流した際に外部電極4が局所発熱を起こして断線してしまう可能性がある。

[0137] さらに、外部電極4の圧電体層1側表層部にガラスリッチ層が形成されていることが望ましい。これは、ガラスリッチ層が存在しないと、外部電極4中のガラス成分との接合が困難になるため、外部電極4が圧電体層1との強固な接合が容易でなくなる可能性がある。

[0138] また、外部電極4を構成するガラスの軟化点(℃)が、内部電極2を構成する導電材の融点(℃)の4/5以下であることが望ましい。これは、外部電極4を構成するガラス

の軟化点が、内部電極2を構成する導電材の融点の4/5を超えると、外部電極4を構成するガラスの軟化点と内部電極2を構成する導電材の融点と同程度の温度になるため、外部電極4を焼き付ける温度が必然的に内部電極2を構成する融点に近づくので、外部電極4の焼き付けの際に、内部電極2及び外部電極4の導電材が凝集して拡散接合を妨げたり、また、焼き付け温度を外部電極4のガラス成分が軟化するのに十分な温度に設定できないため、軟化したガラスによる十分な接合強度を得ることができない場合がある。さらに、外部電極4の圧電体層1側表層部にガラスリッチ層が形成されていることが望ましい。これは、ガラスリッチ層が存在しないと、外部電極4中のガラス成分との接合が困難になるため、外部電極4が圧電体層1との強固な接合が容易でなくなる可能性がある。

[0139] さらに、外部電極4を構成するガラスを非晶質にすることが望ましい。これは、結晶質のガラスでは、積層型圧電アクチュエータの伸縮によって生じる応力を外部電極4が吸収できないので、クラック等が発生する場合がある。

さらに、外部電極4の厚みが圧電体層1の厚みよりも薄いことが望ましい。これは、外部電極4の厚みが圧電体層1の厚みよりも厚いと、外部電極4の強度が増大するため、積層体が伸縮する際に、外部電極4と内部電極2の接合部の負荷が増大し、接点不良が生じる場合がある。

[0140] さらに、外部電極4の外面に、金属のメッシュ若しくはメッシュ状の金属板が埋設された導電性接着剤からなる導電性補助部材を形成してもよい。このように外部電極4の外面に導電性補助部材を設けることにより、アクチュエータに大電流を投入して高速で駆動させる場合においても、電流が導電性補助部材にも流れるので、外部電極4に流れる電流を低減できる。これにより、外部電極4が局所発熱を起こし断線することを防ぐことができ、耐久性を大幅に向上させることができる。さらには、導電性接着剤中に金属のメッシュ若しくはメッシュ状の金属板を埋設しているため、前記導電性接着剤にクラックが生じるのを防ぐことができる。

[0141] 金属のメッシュとは金属線を編み込んだものであり、メッシュ状の金属板とは、金属板に孔を形成してメッシュ状にしたものをいう。

さらに、前記導電性補助部材を構成する導電性接着剤は導電性粒子を分散させた

ポリイミド樹脂からなることが望ましい。

[0142] また、その導電性粒子は銀粉末であることが望ましい。これは、導電性粒子に比較的抵抗値の低い銀粉末を使用することによって、導電性接着剤における局所発熱を抑制しやすいからである。また、比抵抗の低い銀粉末を、耐熱性の高いポリイミド樹脂に分散させることにより、高温での使用に際しても、抵抗値が低く且つ高い接着強度を維持した導電性補助部材を形成することができる。さらに望ましくは、前記導電性粒子はフレーク状や針状などの非球形の粒子であることが望ましい。これは、導電性粒子の形状をフレーク状や針状などの非球形の粒子とすることにより、該導電性粒子間の絡み合いを強固にすることができ、該導電性接着剤のせん断強度をより高めることができるためである。

[0143] また、本発明の積層型圧電素子は、単板あるいは積層数が1またはそれ以上からなることが好ましい。これにより、素子に加えられた圧力を電圧に変換することも、素子に電圧を加えることで素子を変位させることもできるため、素子駆動中に予期せぬ応力を加えられたとしても、応力を分散して電圧変換することで、応力緩和させることができるので、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。

[0144] 本発明の積層型圧電素子はこれらに限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲であれば種々の変更は可能である。

[0145] また、上記では、積層体の対向する側面に外部電極4を形成した例について説明したが、本発明では、例えば隣設する側面に一对の外部電極を形成してもよい。

尚、本発明では、積層体が必ずしも四角柱である必要は無く、円柱、多角柱等さまざまな形であってもよい。

[0146] 実施の形態4.

図6は、本発明の噴射装置を示すもので、収納容器31の一端には噴射孔33が設けられ、また収納容器31内には、噴射孔33を開閉することができるニードルバルブ35が收容されている。

[0147] 噴射孔33には燃料通路37が連通可能に設けられ、この燃料通路37は外部の燃料供給源に連結され、燃料通路37に常時一定の高圧で燃料が供給されている。従

って、ニードルバルブ35が噴射孔33を開放すると、燃料通路37に供給されていた燃料が一定の高圧で内燃機関の図示しない燃料室内に噴出されるように形成されている。

[0148] また、ニードルバルブ35の上端部は直径が大きくなっており、収納容器31に形成されたシリンダ39と摺動可能なピストン41となっている。そして、収納容器31内には、上記した圧電アクチュエータ43が収納されている。

[0149] このような噴射装置では、圧電アクチュエータ43が電圧を印加されて伸長すると、ピストン41が押圧され、ニードルバルブ35が噴射孔33を閉塞し、燃料の供給が停止される。また、電圧の印加が停止されると圧電アクチュエータ43が収縮し、皿バネ45がピストン41を押し返し、噴射孔33が燃料通路37と連通して燃料の噴射が行われるようになっている。

[0150] また、本発明は、積層型圧電素子および噴射装置に関するものであるが、上記実施例に限定されるものではなく、例えば、自動車エンジンの燃料噴射装置、インクジェット等の液体噴射装置、光学装置等の精密位置決め装置や振動防止装置等に搭載される駆動素子、または、燃焼圧センサ、ノックセンサ、加速度センサ、荷重センサ、超音波センサ、感圧センサ、ヨーレートセンサ等に搭載されるセンサ素子、ならびに圧電ジャイロ、圧電スイッチ、圧電トランス、圧電ブレーカー等に搭載される回路素子以外であっても、圧電特性を用いた素子であれば、実施可能であることは言うまでもない。

## 実施例

[0151] 実施例1〜3.

実施例1〜3として、本発明に係る積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。

まず、チタン酸ジルコン酸鉛( $\text{PbZrO}_3\text{--PbTiO}_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み $150\mu\text{m}$ の圧電体層1になるセラミックグリーンシートを作製した。

[0152] このセラミックグリーンシートの片面に、任意の組成比で形成された銀-パラジウム合金にバインダーを加えた導電性ペーストが、スクリーン印刷法により $3\mu\text{m}$ の厚み

に形成されたシートを300枚積層し、1000℃で焼成した。

次に、ダイシング装置により積層体の側面の内部電極の端部に一層おきに深さ50  $\mu\text{m}$ 、幅50  $\mu\text{m}$ の溝を形成した。

[0153] 次に、平均粒径2  $\mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末を90体積%と、残部が平均粒径2  $\mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が640℃の非晶質のガラス粉末10体積%との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計重量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製した。このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。このシートの生密度をアルキメデス法にて測定したところ、6.5g/cm<sup>3</sup>であった。

[0154] 次に、前記銀ガラスペーストのシートを積層体の外部電極4面に転写し、650℃で30分焼き付けを行い、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極4を形成した。なお、この時の外部電極4の空隙率は、外部電極4の断面写真を画像解析装置を用いて測定したところ40%であった。

[0155] その後、外部電極4にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極4にリード線を介して3kV/mmの直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図1に示すような積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータを作製した。

[0156] 実施例1.

上記の製法に加えて、素子抵抗の抵抗値や圧電体層1の誘電損失( $\tan \delta$ )を抑制して作製された本発明の積層型圧電アクチュエータにおいて、積層型圧電アクチュエータの連続駆動前後における素子変位量の変化率、圧電体の厚み寸法変化率、素子抵抗の変化率、および素子温度の変化率を測定し、それらと積層型圧電アクチュエータの長期駆動による劣化の度合との関連について検証した。

[0157] ここで、劣化の度合とは、積層型圧電アクチュエータを任意の回数で駆動させた後の素子変位量(連続駆動後の素子変位量)を測定し、さらに、上記の積層型圧電アクチュエータを所定の回数で駆動させた後の素子変位量(長期駆動後の素子変位量)を測定して、該長期駆動後の素子変位量が前記連続駆動後の素子変位量に対して変化した割合で示している。これにより、任意の回数で駆動した積層型圧電アクチュ



エータを、さらに所定回数で駆動させて、これによって引き起こされる劣化の様子を確認することができる。

[0158] また、比較例として、上記の積層型圧電アクチュエータの連続駆動前後における素子変位量の変化率、または素子抵抗の変化率が5%を超える範囲で形成した試料を作製した。

[0159] 上記のようにして得られた積層型圧電アクチュエータに対して、170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に45  $\mu$  mの変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で0〜+170 Vの交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動し、さらに、 $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動した試験を行った。結果は表1に示すとおりである。圧電体の厚み寸法変化率を測定するには、駆動前の積層型圧電素子の側面をSEMを用いて任意の10箇所の圧電体の厚み寸法を測定して平均値を算出し、駆動後、同一箇所の厚み寸法を測定して平均値を算出し、駆動前後の圧電体の厚み寸法の変化率を算出した。

[0160] 表1-1

No	銀100%の抵抗を1として規格化した内部電極抵抗	圧電体の誘電体損失 $\tan \delta$ (%)	初期状態の変位量 ( $\mu$ m) = A	連続駆動後 ( $1 \times 10^9$ 回) 素子温度の変化率 (%)
1	2	0.5	45.0	0.0
2	3	0.5	45.0	0.2
3	3.5	0.5	45.0	0.4
4	4	0.5	45.0	0.6
5	5	0.5	45.0	0.8
6	8	0.5	45.0	1.2
7	10	0.5	45.0	2.6
8	5	1.0	45.0	4.5
* 9	5	1.5	45.0	6.2

[0161] 表1-2

N o	連続駆動後 ( $1 \times 10^9$ 回) 圧電体厚み寸法の変化率 (%)	連続駆動後 ( $1 \times 10^9$ 回) 素子抵抗の変化率 (%)	連続駆動後 ( $1 \times 10^9$ 回) 最大変位量 ( $\mu m$ ) = B
1	0 . 0	0 . 0	4 5 . 0
2	0 . 2	0 . 2	4 4 . 9
3	0 . 4	0 . 4	4 4 . 8
4	0 . 6	0 . 7	4 4 . 7
5	0 . 8	0 . 9	4 4 . 6
6	1 . 2	1 . 3	4 4 . 4
7	2 . 6	2 . 9	4 3 . 7
8	5 . 0	5 . 0	4 2 . 8
* 9	6 . 4	6 . 9	4 1 . 9

[0162] 表1-3

N o	初期状態に対する連続駆動後の変位量変化率 (%) = $  (A-B) / A \times 100  $	長期駆動後 ( $1 \times 10^{10}$ 回) の変位量 ( $\mu m$ ) = C	劣化の度合 (%) = $  (B-C) / B \times 100  $
1	0 . 0	4 5 . 0	0 . 0 0
2	0 . 2	4 4 . 9	0 . 0 0
3	0 . 4	4 4 . 7	0 . 2 2
4	0 . 7	4 4 . 6	0 . 2 2
5	0 . 9	4 4 . 4	0 . 4 5
6	1 . 3	4 4 . 1	0 . 6 8
7	2 . 9	4 3 . 2	1 . 1 4
8	5 . 0	4 1 . 9	2 . 1 0
* 9	6 . 9	3 8 . 5	8 . 1 1

表中、\*を付した試料は、比較例である。

[0163] この表1から、比較例である試料番号9は、連続駆動前後における素子変位量の変化率が5%よりも大きいため、積層型圧電アクチュエータを $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動さ

せた後に $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させると、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動させた後の素子変位量に比べて、 $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させた後の素子変位量が著しく低下したので、劣化の度合が増大し、積層型圧電アクチュエータの連続駆動が困難になった。

[0164] また、連続駆動前後における素子抵抗の変化率が5%よりも大きいため、積層型圧電アクチュエータを $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後に $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させると、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後の素子変位量に比べて、 $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させた後の素子変位量が著しく減少したので、劣化の度合が増大し、積層型圧電アクチュエータの連続駆動が困難になった。

[0165] さらに、連続駆動前後における圧電体寸法の変化率が5%よりも大きいため、積層型圧電アクチュエータを $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後に $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させると、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後の素子変位量に比べて、 $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させた後の素子変位量が著しく減少したので、劣化の度合が増大し、積層型圧電アクチュエータの連続駆動が困難になった。

[0166] これに対して、本発明に係る実施例1の試料番号1〜8では、連続駆動前後における素子変位量の変化率が5%以内の範囲で形成した積層型圧電アクチュエータであったため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後に $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させても、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効的な変位量を有し、また、熱暴走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0167] 同様に、実施例1の試料番号1〜8では、連続駆動前後における素子抵抗の変化率が5%以内であったため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後に $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させても、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効的な変位量を有し、また、熱暴走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0168] 同様に、実施例1の試料番号1〜8では、連続駆動前後における圧電体寸法の変化率が5%以内であったため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後に $1 \times 10^{10}$ 回まで長期駆動させても、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして

必要とする実効的な変位量を有し、また、熱暴走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0169] 実施例2.

上記の製法に加えて、素子抵抗の抵抗値や圧電体層1の誘電損失( $\tan \delta$ )を抑制して作製された本発明の積層型圧電アクチュエータにおいて、積層型圧電アクチュエータの連続駆動中における素子変位量の最大変化率、素子抵抗の最大変化率、および素子温度の変化率を測定し、それらと積層型圧電アクチュエータの耐久性との関連について検証した。

[0170] ここで、劣化の度合とは、積層型圧電アクチュエータを任意の回数で駆動中の最大素子変位量(連続駆動中の最大素子変位量)を測定し、さらに、上記の積層型圧電アクチュエータを所定の回数で駆動させた後の素子変位量(連続駆動後の素子変位量)を測定して、該連続駆動後の素子変位量が前記連続駆動中の最大素子変位量に対して変化した割合で示している。これにより、任意の回数で駆動中の積層型圧電アクチュエータを所定回数で連続駆動させたことによって引き起こされる劣化の様子を確認することができる。

[0171] また、比較例として、上記の積層型圧電アクチュエータの連続駆動中における素子変位量の変化率、または素子抵抗の変化率が5%を超える範囲で形成した試料を作製した。

[0172] 上記のようにして得られた積層型圧電アクチュエータに対して、170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に45  $\mu$  mの変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で0〜+170 Vの交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動させた駆動試験を行った。結果は表2に示すとおりである。

[0173] 表2-1

No	銀100%の抵抗を 1として規格化 した内部電極抵 抗	圧電体の誘電体損 失 $\tan \delta$ (%)	初期状態の変位量 ( $\mu\text{m}$ ) = A
1	2	0.5	45.0
2	3	0.5	45.0
3	4	0.5	45.0
4	5	0.5	45.0
5	8	0.5	45.0
6	10	0.5	45.0
7	5	1.5	45.0
* 8	8	1.5	45.0
* 9	10	2.5	45.0

[0174] 表2-2

No.	連続駆動中 ( $1 \times 10^8$ 回) 素子温度の最大 変化率 (%)	連続駆動中 ( $1 \times 10^8$ 回) 素子抵抗の最大 変化率 (%)	連続駆動中 ( $1 \times 10^8$ 回) 最大変位量 ( $\mu\text{m}$ ) = B
1	0.0	0.0	45.0
2	0.2	0.2	44.9
3	0.4	0.4	44.8
4	0.6	0.7	44.7
5	0.8	0.9	44.6
6	1.8	2.0	44.1
7	4.5	5.0	42.8
* 8	7.0	7.8	41.5
* 9	5.0	5.6	47.5

[0175] 表2-3

N o .	初期状態に対する連続 駆動中の変位量の最大 変化率 (%) =   (A - B) / A × 100	連続駆動後 (1 × 10 <sup>9</sup> 回 ) の変位量 (μm) = C	劣化の度合 (%) =   (B - C) / B × 10 0
1	0	4 5 . 0	0 . 0 0
2	0 . 2	4 4 . 9	0 . 0 0
3	0 . 4	4 4 . 7	0 . 2 2
4	0 . 7	4 4 . 6	0 . 2 2
5	0 . 9	4 4 . 4	0 . 4 5
6	2 . 0	4 3 . 7	0 . 9 1
7	5 . 0	4 1 . 9	1 . 9 9
* 8	7 . 8	3 8 . 0	8 . 4 3
* 9	5 . 6	熱暴走発生	—

\*を付した試料番号は本発明の請求範囲外のものである。

[0176] この表2から、比較例である試料番号8および9は、連続駆動中における素子変位量の最大変化率が5%よりも大きいため、積層型圧電アクチュエータを1 × 10<sup>9</sup>回まで連続駆動させて、1 × 10<sup>8</sup>回まで連続駆動中の最大素子変位量に比べて、1 × 10<sup>9</sup>回まで連続駆動させた後の素子変位量が著しく低下したので劣化の度合が増大し、また、試料番号9は熱暴走によって素子が破壊したため、積層型圧電アクチュエータの連続駆動が困難になった。

[0177] また、連続駆動中における素子抵抗の最大変化率が5%よりも大きいため、積層型圧電アクチュエータを1 × 10<sup>9</sup>回まで連続駆動させて、1 × 10<sup>8</sup>回まで連続駆動中の最大素子変位量に比べて、1 × 10<sup>9</sup>回まで連続駆動させた後の素子変位量が著しく低下したので、劣化の度合が増大し、積層型圧電アクチュエータの連続駆動が困難になった。

[0178] これらに対して、本発明に係る実施例2の試料番号1〜7では、連続駆動中における素子変位量の最大変化率が5%以内の範囲で形成した積層型圧電アクチュエータであったため、1 × 10<sup>9</sup>回連続駆動させた後でも、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効的な変位量を有し、また、熱暴

走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0179] 同様に、実施例2の試料番号1〜7では、連続駆動前後における素子抵抗の変化率が5%以内であったため、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動させた後でも、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効的な変位量を有し、また、熱暴走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0180] 実施例3.

上記の製法において、様々な電極材料組成で形成した内部電極2を有する積層型圧電アクチュエータにおいて、積層型圧電アクチュエータの連続駆動中における素子変位量の最大変化率を測定し、内部電極2の電極材料組成と積層型圧電アクチュエータの連続駆動による劣化の度合との関連について検証した。

[0181] 上記のようにして得られた積層型圧電アクチュエータに対して、170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に45  $\mu$  mの変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で0〜+170 Vの交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動させた駆動試験を行った。結果は表2に示すとおりである。

[0182] 表3-1

No	内部電極金属中のPd (重量%)	内部電極金属中のAg (重量%)	内部電極金属中のCu (重量%)	内部電極金属中のNi (重量%)
1	0	100	0	0
2	0.001	99.999	0	0
3	0.01	99.99	0	0
4	0.1	99.9	0	0
5	0.5	99.5	0	0
6	1	99	0	0
7	2	98	0	0
8	4	95	1	0
9	5	95	0	0
10	8	92	0	0
11	9	91	0	0
12	9.5	90.5	0	0
13	10	90	0	0
14	15	85	0	0
15	0	0	100	0
16	0	0	99.9	0.1
17	0	0	0	100
18	20	80	0	0
19	30	70	0	0

[0183] 表3-2



No.	初期状態に対する 連続駆動後の 変位量変化率 (%)	劣化の度合 (%)
1	マイグレーションで破損	—
2	0.7	0.22
3	0.7	0.22
4	0.4	0.22
5	0.2	0.00
6	0.2	0.00
7	0	0.00
8	0	0.00
9	0	0.00
10	0	0.00
11	0.2	0.00
12	0.2	0.00
13	0.4	0.22
14	0.7	0.22
15	0.2	0.00
16	0	0.00
17	0.4	0.22
18	0.9	0.45
19	0.9	0.45

[0184] この表3から、試料番号1は内部電極2を銀100%で形成したため、シルバー・マイグレーションが起こり、積層型圧電アクチュエータの破損が発生するので、連続駆動が困難となった。

また、試料番号18、19は内部電極2中の金属組成物において、VIII族金属の含有量が15重量%を超えており、また、Ib族金属の含有量が85重量%未満であるため、連続駆動によって劣化が増大するので、積層型圧電アクチュエータの耐久性が低下した。

[0185] これらに対して、本発明に係る実施例3の試料番号2〜17では内部電極2中の金

属組成物がVIII族金属の含有量をM1(重量%)、Ib族金属の含有量をM2(重量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足する金属組成物を主成分としたため、内部電極2の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極2で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できた。

[0186] なお、本発明は、上記実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内で種々の変更を行うことは何等差し支えない。

[0187] 実施例4.

実施例4として、本発明に係る積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。

[0188] まず、柱状積層体を作製した。圧電体は厚み $150 \mu\text{m}$ のチタン酸ジルコン酸鉛( $\text{PbZrO}_3\text{--PbTiO}_3$ )、で形成し、これに、内部電極は厚み $3 \mu\text{m}$ にて形成し、圧電体及び内部電極の各々の積層数は300層とした。内部電極には、表4に示すような金属(例えば90Ag–10Pd)とセラミック等の粉末の混合物を用いた。セラミック粉末としては、PZT、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、PZTと $\text{ZrO}_2$ の混合物、PZTと $\text{TiO}_2$ の混合物等を用いることが好ましい。ここでは、表4–3に示す材料を表に示す割合で用いた。また、セラミック等の粉末の粒径は、 $1.5 \mu\text{m}$ 以下の柱を成す粒子はアスペクト比が3以下のものを用いた。その後、積層体は $400\text{--}700^\circ\text{C}$ で脱脂した後、 $850^\circ\text{C}$ で20分保持した後に $1000^\circ\text{C}$ 保持し焼結体を得た。内部電極の金属組成物がNiの場合は、積層体は $400\text{--}700^\circ\text{C}$ で脱脂した後、 $1050^\circ\text{C}$ で20分保持した後に $1200^\circ\text{C}$ 保持し焼結体を得た。

[0189] その後、ダイシング装置により柱状積層体の側面の内部電極の端部に一層おきに深さ $50 \mu\text{m}$ 、幅 $50 \mu\text{m}$ の溝を形成した。

次に、平均粒径 $2 \mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末を90体積%と、残部が平均粒径 $2 \mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^\circ\text{C}$ の非晶質のガラス粉末10体積%との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計重量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製した。このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離

型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。このシートの生密度をアルキメデス法にて測定したところ、 $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ であった。

[0190] 次に、前記銀ガラスペーストのシートを柱状積層体の外部電極面に転写し、 $650^\circ\text{C}$ で30分焼き付けを行い、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極を形成した。なお、この時の外部電極の空隙率は、外部電極の断面写真を画像解析装置を用いて測定したところ40%であった。

その後、外部電極にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極にリード線を介して $3\text{kV}/\text{mm}$ の直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図1に示すような積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを作製した。

[0191] 得られた積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータに170Vの直流電圧を印加し、それぞれの試料における変位量を測定し、そのばらつきを計算して、表4に示した。さらに、この積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータに室温で $0\sim+170\text{V}$ の交流電圧を150Hzの周波数にて印加し駆動試験を行った。

[0192] 駆動回数が $1\times 10^9$ 回に達した積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータに170V印加の直流電圧を印加し、それぞれの試料における変位量を測定し、駆動試験前後の変位量の変化を算出した。計算は、駆動試験前の変位量を分子とし、駆動試験後の変位量を分母とし、これに100を乗じて%で表した。

尚、内部電極を貫き圧電体間をつなぐ柱の径、個数は、下記のようにして測定した。

[0193] 接合部分が最大径の50%以上である柱の割合については、図2のように積層型圧電素子の内部電極2付近の断面写真において1mmの長さを測定し、各柱18について最大径A、柱18と圧電体層1の接合部分22の径Bを測定し、 $(B/A)\times 100$ の計算をして、柱18の最大径Aと柱18と圧電体層1との接合部分22の径Bの割合を求めた。そして、その値が50%以上のものが測定した数の何%あるかを計算した。このようなことを、10箇所行って平均を取って数値として表した。また、柱の最小径は、上記と同様の測定で行った。また測定は10箇所で行った。

以上の結果及び内部電極の材質、圧電体と柱との熱膨張差等を表4に示した。

[0194] 表4-1

N o	柱	接合部分が最大径の 5 0 % 以上である柱の割合	柱の最小径の平均値	1 m m 当りの柱の個数
	—	%	$\mu$ m	個
1	有り	2 0	1	6 5
2	有り	3 0	1	7 7
3	有り	5 0	1	8 3
4	有り	7 0	1	7 6
5	有り	9 0	1	6 8
6	有り	5 0	0 . 1	9 5
7	有り	5 0	0 . 2	8 4
8	有り	5 0	0 . 5	6 3
9	有り	5 0	1	6 1
1 0	有り	5 0	3	5 0
1 1	有り	5 0	5	3 4
1 2	有り	5 0	2	5
1 3	有り	5 0	2	1 1
1 4	有り	5 0	2	5 4
1 5	有り	5 0	2	9 9
1 6	有り	5 0	2	1 4 8
1 7	有り	5 0	1	8 4
1 8	有り	5 0	1	9 0
1 9	有り	5 0	1	7 9
2 0	有り	5 0	1	7 6
2 1	有り	5 0	1	8 6
2 2	有り	5 0	1	8 3
2 3	有り	5 0	1	7 6
2 4	有り	5 0	1	8 9
2 5	有り	5 0	1	8 3
2 6	無し	—	—	—

[0195] 表4-2

No	圧電体と柱の熱膨 張差 $\times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$	圧電体 と柱の 材料	内部電極の材質
1	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
2	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
3	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
4	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
5	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
6	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
7	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
8	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
9	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
10	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
11	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
12	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
13	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
14	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
15	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
16	0	同じ	90 Ag - 10 Pd
17	2	異なる	90 Ag - 10 Pd
18	5	異なる	90 Ag - 10 Pd
19	6	異なる	90 Ag - 10 Pd
20	0	同じ	85 Ag - 15 Pd
21	0	同じ	95 Ag - 5 Pd
22	0	同じ	99 Ag - 1 Pd
23	0	同じ	99.9 Ag - 0.1 Pd
24	0	同じ	100 Cu
25	0	同じ	100 Ni
26	—	—	70 Ag - 30 Pd

表4-3

N o	柱の材質	添加量 (重量%)
1	P Z T	2 0
2	P Z T	2 3
3	P Z T	2 4
4	P Z T	2 2
5	P Z T	2 0
6	P Z T	2 7
7	P Z T	2 4
8	P Z T	1 9
9	P Z T	1 9
1 0	P Z T	1 6
1 1	P Z T	1 2
1 2	P Z T	5
1 3	P Z T	6
1 4	P Z T	1 7
1 5	P Z T	2 8
1 6	P Z T	4 0
1 7	P Z T 2 0 % + Z r O <sub>2</sub> 8 0 %	2 4
1 8	P Z T 5 0 % + Z r O <sub>2</sub> 5 0 %	2 6
1 9	P Z T 5 0 % + T i O <sub>2</sub> 5 0 %	2 3
2 0	P Z T	2 2
2 1	P Z T	2 5
2 2	P Z T	2 4
2 3	P Z T	2 2
2 4	P Z T	2 6
2 5	P Z T	2 4
2 6	—	—

[0196] 表4-4

No	変位量のばらつき %	連続耐久試験後 の変位量の変化 率%
1	10	5
2	8	4
3	5	2.5
4	5	1
5	4	0.5
6	8	4
7	7	4
8	6	3
9	5.5	2.5
10	4	1
11	3	0.5
12	7	4
13	6	3
14	4	2
15	3	0.5
16	2	0.5
17	3	0.5
18	3	0.5
19	3	0.5
20	3	1
21	3	0.5
22	3	0.5
23	3	0.5
24	3	0.5
25	3	0.5
26	20	10

[0197] 内部電極を貫き、内部電極を挟んで対向する圧電体をつなぐ柱を設けた本発明に係る実施例4の試料No. 1～25は、初期の変位量のばらつきは10%以下で、比較例(No. 26)に比べて小さかった。また、連続耐久試験後の変位量の変化も5%以下と小さく、比較例に比べ信頼性及び耐久性に優れることがわかった。

特に接合部分が最大径の50%以上である柱の個数が30%以上の場合である実施形4の試料No. 2～25は、初期の変位量のばらつきが8%以下、連続耐久試験後の変位量の変化も4%以下と更に小さく、信頼性及び耐久性が更に優れることがわかった。

[0198] 更に接合部分が最大径の50%以上である柱の個数が50%以上、柱の最小径の平均値が $0.2\mu\text{m}$ の場合である実施例4の試料No. 3-5及び7-25は、初期の変位量のばらつきが7%以下と更に小さく、信頼性が更に優れることがわかった。

一方、本発明の範囲外である柱を設けていない試料No. 26は、初期の変位量のばらつきが20%と悪くまた、連続耐久試験後の変位量の変化も10%と悪く、信頼性及び耐久性において本発明品に比べ劣っていた。

[0199] 実施例5.

実施例5として、本発明に係る積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。

まず、チタン酸ジルコン酸鉛( $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み $150\mu\text{m}$ の圧電体層1になるセラミックグリーンシートを作製した。

[0200] このセラミックグリーンシートの片面に、任意の組成比で形成された銀-パラジウム合金にバインダーを加えた導電性ペースト、Agにバインダーを加えた導電性ペースト、Cuにバインダーを加えた導電性ペースト、Niにバインダーを加えた導電性ペーストのいずれかを選択し、スクリーン印刷法により $3\mu\text{m}$ の厚みに形成されたシートを300枚、積層体用として用意した。これとは別に保護部になるグリーンシートを用意し、これらを下から保護部用の30枚、駆動積層部用の300枚、保護部用の30枚を積層し、プレスした後、 $1000^\circ\text{C}$ で焼成した。

[0201] その後、ダイシング装置により積層体の側面の内部電極の端部に一層おきに深さ $50\mu\text{m}$ 、幅 $50\mu\text{m}$ の溝を形成した。

[0202] 次に、平均粒径 $2\mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末を90体積%と、残部が平均粒径 $2\mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^\circ\text{C}$ の非晶質のガラス粉末10体積%との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計重量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製した。このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。このシートの生密度をアルキメデス法にて測定したところ、 $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ であった。



[0203] そして、銀ガラスペーストのシートを積層体の外部電極面に転写し、650℃で30分焼き付けを行い、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極を形成した。なお、この時の外部電極の空隙率は、外部電極の断面写真の画像解析装置を用いて測定したところ40%であった。

[0204] その後、外部電極にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極にリード線を介して3kV/mmの直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図5に示すような積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータを作製した。

得られた積層型圧電素子に170Vの直流電圧を印加した結果、積層方向に45  $\mu$ mの変位量が得られた。さらに、この積層型圧電素子に室温で0～+170Vの交流電圧を150Hzの周波数にて印加し駆動試験を行った。

[0205] そして、この積層型圧電素子が駆動回数 $1 \times 10^9$ 回まで連続のテストを行って、この時まで不良になった数を不良率として表した。

結果を表5に示す。尚、表5に示すように保護部の圧電体の厚みは50～200  $\mu$ mまで変化させ、ダミー層としては銀-パラジウム合金、銀、銅、ニッケルのいずれかを用いた。また、ダミー層には、無機組成物としてPZTを含有させた。

[0206] 表5-1

N o	A / B	ダミー層
1	0 . 0 4	9 9 . 9 9 A g - 0 . 0 1 P d
2	0 . 0 4	9 9 A g - 1 P d
3	0 . 0 4	9 5 A g - 5 P d
4	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
5	0 . 0 4	7 0 A g - 3 0 P d
6	0 . 0 4	5 0 A g - 5 0 P d
7	0 . 0 0 5	9 0 A g - 1 0 P d
8	0 . 0 1	9 0 A g - 1 0 P d
9	0 . 0 2	9 0 A g - 1 0 P d
1 0	0 . 0 3	9 0 A g - 1 0 P d
1 1	0 . 0 5	9 0 A g - 1 0 P d
1 2	0 . 0 6	9 0 A g - 1 0 P d
1 3	0 . 0 7	9 0 A g - 1 0 P d
1 4	0 . 0 8	9 0 A g - 1 0 P d
1 5	0 . 0 9	9 0 A g - 1 0 P d
1 6	0 . 0 2	9 5 A g - 5 P d
1 7	0 . 0 8	9 5 A g - 5 P d
1 8	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
1 9	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 0	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 1	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 2	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 3	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 4	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 5	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 6	0 . 0 4	9 0 A g - 1 0 P d
2 7	0 . 0 4	1 0 0 A g
2 8	0 . 0 4	1 0 0 C u
2 9	0 . 0 4	1 0 0 N i
3 0	0 . 0 4	ガラス

[0207] 表5-2

No	内部電極	圧電体の厚み ( $\mu\text{m}$ )	ダミー層中の無機組成物の含有量 (wt %)	連続耐久試験後の不良率 (%)
1	ダミー層と同じ	100	20	0.3
2	ダミー層と同じ	100	20	0.1
3	ダミー層と同じ	100	20	0.2
4	ダミー層と同じ	100	20	0.2
5	ダミー層と同じ	100	20	0.4
6	ダミー層と同じ	100	20	0.8
7	ダミー層と同じ	100	20	3
8	ダミー層と同じ	100	20	2
9	ダミー層と同じ	100	20	1
10	ダミー層と同じ	100	20	0.5
11	ダミー層と同じ	100	20	0.4
12	ダミー層と同じ	100	20	0.5
13	ダミー層と同じ	100	20	0.8
14	ダミー層と同じ	100	20	2
15	ダミー層と同じ	100	20	3.5
16	ダミー層と同じ	100	20	0.8
17	ダミー層と同じ	100	20	1.8
18	ダミー層と同じ	50	20	0.2
19	ダミー層と同じ	70	20	0.2
20	ダミー層と同じ	150	20	0.3
21	ダミー層と同じ	200	20	0.2
22	ダミー層と同じ	100	2	0.4
23	ダミー層と同じ	100	10	0.2
24	ダミー層と同じ	100	30	0.2
25	ダミー層と同じ	100	40	0.4
26	70Ag-30Pd	100	20	1
27	ダミー層と同じ	100	20	0.2
28	ダミー層と同じ	100	20	0.2
29	ダミー層と同じ	100	20	0.2
30	70Ag-30Pd	100	20	1

[0208] 表5より、積層方向と垂直な断面の同一面で前記ダミー層の外周から保護部の側面までの最短距離をA、保護部の幅をBとした時にA/Bが0.01〜0.08である本発明に係る実施例5の試料No. 1〜6、8〜14、16〜30は、連続耐久試験後の不良率は2%以下で比較例(No. 7、15)に比べて小さく耐久性に優れることがわかった。

- [0209] 特に $A/B$ が0.02～0.07である実施例5の試料No. 1～6、9～13、16、18～30は、連続耐久試験後の不良率が1%以下で更に小さく耐久性に優れることがわかった。
- [0210] 更に $A/B$ が0.02～0.07で、ダミー層に金属を含み、内部電極がダミー層と同じ物質からなり、圧電体の厚みが $50\mu\text{m}$ 以上、ダミー層に無機組成物を2wt%以上含む実施例5の試料No. 1～6、10～13、16、18～25、27～29は、連続耐久試験後の不良率が0.8%以下で更に小さく耐久性が更に優れることがわかった。
- [0211] 一方、本発明の範囲外である $A/B$ が0.01より小さい試料No. 7、 $A/B$ が0.08より大きい試料No. 15は、耐久試験後の不良率が3%以上と悪く、耐久性において本発明品に比べ劣っていた。

#### 産業上の利用可能性

- [0212] 本発明の積層型圧電素子は、圧電トランスに利用できる。また、本発明の積層型圧電素子は、自動車用燃料やインクジェットプリンタのインク等の噴射装置、光学装置等の精密位置決め装置や振動防止用の駆動素子等に用いられる積層型圧電アクチュエータに利用できる。さらに、燃焼圧センサ、ノックセンサ、加速度センサ、荷重センサ、超音波センサ、感圧センサ、ヨーレートセンサ等に搭載されるセンサ素子、ならびに圧電ジャイロ、圧電スイッチ、圧電トランス、圧電ブレーカー等に搭載される回路素子に用いられる積層型圧電素子に利用できる。

## 請求の範囲

- [1] 圧電体層と内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、その積層体の第1の側面と第2の側面にそれぞれ形成された外部電極とを備え、隣接する内部電極の一方の内部電極は前記第1の側面で前記外部電極に接続され、他方の内部電極は前記第2の側面で前記外部電極に接続された積層型圧電素子において、  
 $1 \times 10^9$ 回以上の連続駆動後における素子変位量の連続駆動前の素子変位量に対する変化率が5%以内であることを特徴とする積層型圧電素子。
- [2] 圧電体層と内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、その積層体の第1の側面と第2の側面にそれぞれ形成された外部電極とを備え、隣接する内部電極の一方の内部電極は前記第1の側面で前記外部電極に接続され、他方の内部電極は前記第2の側面で前記外部電極に接続された積層型圧電素子において、  
 $1 \times 10^9$ 回以上の連続駆動後における素子抵抗の連続駆動前の素子抵抗の変化率が5%以内であることを特徴とする積層型圧電素子。
- [3] 連続駆動中の素子変位量の最大変化率が5%以内であることを特徴とする請求項1又は2に記載の積層型圧電素子。
- [4]  $1 \times 10^9$ 回以上の連続駆動後における圧電体層の厚み寸法の連続駆動前の圧電体層の厚み寸法に対する寸法変化率が5%以内であることを特徴とする請求項1又は2に記載の積層型圧電素子。
- [5] 連続駆動中の素子抵抗の最大変化率が5%以内であることを特徴とする請求項1又は2に記載の積層型圧電素子。
- [6] 圧電体層と内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、その積層体の第1の側面と第2の側面にそれぞれ形成された外部電極とを備え、隣接する内部電極の一方の内部電極は第1の側面で外部電極に接続され、他方の内部電極は第2の側面で外部電極と接続された積層型圧電素子において、  
前記内部電極を貫き、この内部電極を挟んで対向する圧電体層をつなぐ柱を設けたことを特徴とする積層型圧電素子。
- [7] 上記柱と圧電体層の接合部分の径が柱の最大径の50%以上であるものの個数が全体の30%以上を占めることを特徴とする請求項61に記載の積層型圧電素子。

- [8] 上記柱の最小径の平均値が $0.2\mu\text{m}$ 以上であることを特徴とする請求項6又は7に記載の積層型圧電素子。
- [9] 上記柱が $1\text{mm}$ 当り5〜150本存在することを特徴とする請求項6〜8のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [10] 上記柱と前記圧電体層を構成する圧電体材料との熱膨張差が $3\times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 以下であることを特徴とする請求項6〜9のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [11] 上記柱が圧電体材料と同じ材料からなることを特徴とする請求項6〜10のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [12] 前記積層体は、その上下に、前記圧電体層とダミー層とを交互に積層した不活性保護部を含み、  
前記ダミー層の外周から前記不活性保護部の側面までの最短距離をA、不活性保護部の幅をBとした時に $A/B$ が0.01〜0.08であることを特徴とする請求項1〜11のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [13] 前記ダミー層に金属を含むことを特徴とする請求項12に記載の積層型圧電素子。
- [14] 前記ダミー層が前記圧電層の内部電極と同じ物質からなることを特徴とする請求項12または13に記載の積層型圧電素子。
- [15] 前記圧電体層の厚みが $50\mu\text{m}$ 以上であることを特徴とする請求項12〜14のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [16] 前記ダミー層が、金属酸化物、窒化物及び炭化物のいずれかの無機組成物を含むことを特徴とする請求項12〜15のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [17] 前記ダミー層が無機組成物を2wt%以上含有することを特徴とする請求項12〜16のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [18] 前記内部電極中の金属組成物がVIII族金属および／またはIb族金属を主成分とすることを特徴とする請求項1〜17のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [19] 前記内部電極中のVIII族金属の含有量をM1(重量%)、Ib族金属の含有量をM2(重量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足することを特徴とする請求項18に記載の積層型圧電素子。
- [20] 前記VIII族金属がNi、Pt、Pd、Rh、Ir、Ru、Osのうち少なくとも1種以上であり、Ib

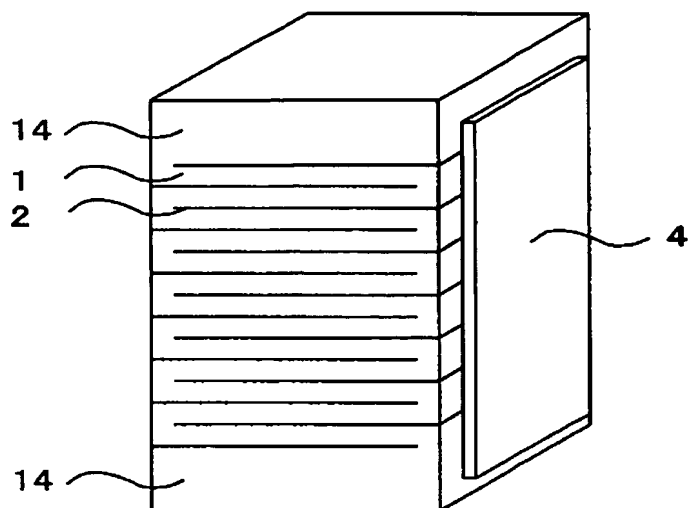
族金属がCu、Ag、Auのうち少なくとも1種以上であることを特徴とする請求項18または19に記載の積層型圧電素子。

- [21] 前記VIII族金属がPt、Pdのうち少なくとも1種以上であり、Ib族金属がAg、Auのうち少なくとも1種以上であることを特徴とする請求項18〜20のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [22] 前記VIII族金属がNiであることを特徴とする請求項18〜20のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [23] 前記Ib族金属がCuであることを特徴とする請求項18〜20のいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [24] 前記内部電極中に金属組成物とともに酸化物、窒化物または炭化物を添加したことを特徴とする請求項1〜23のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [25] 前記酸化物が $\text{PbZrO}_3$ − $\text{PbTiO}_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることを特徴とする請求項24に記載の積層型圧電素子。
- [26] 前記圧電体層がペロブスカイト型酸化物を主成分とすることを特徴とする請求項1〜25のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [27] 前記圧電体層が $\text{PbZrO}_3$ − $\text{PbTiO}_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることを特徴とする請求項26に記載の積層型圧電素子。
- [28] 前記積層体の焼成温度が900℃以上1000℃以下であることを特徴とする請求項1〜27のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [29] 前記内部電極中の組成のずれが焼成前後で5%以下であることを特徴とする請求項1〜25のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [30] 前記積層体の側面に端部が露出する前記内部電極と端部が露出しない前記内部電極とが交互に構成されており、前記端部が露出していない前記内部電極と前記外部電極間の前記圧電体層部分に溝が形成されており、該溝に前記圧電体層よりもヤング率の低い絶縁体が充填されていることを特徴とする請求項1〜29のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。
- [31] 前記内部電極は空隙を含み、前記内部電極の断面における全断面積に対する空隙の占める面積比が5〜70%である請求項1〜30のうちのいずれか1つに記載の積層

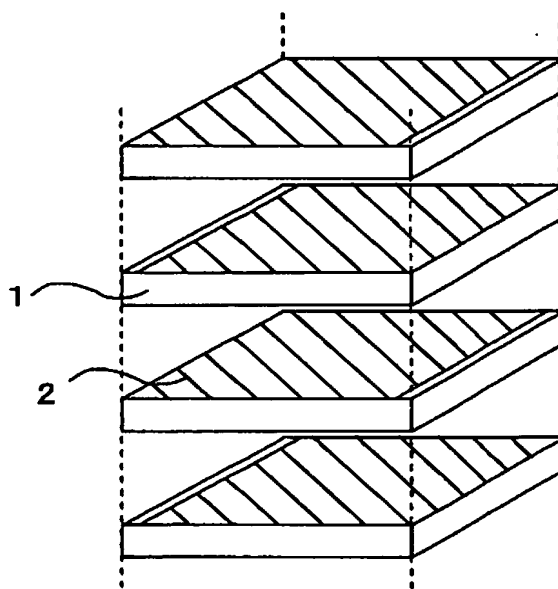
型圧電素子。



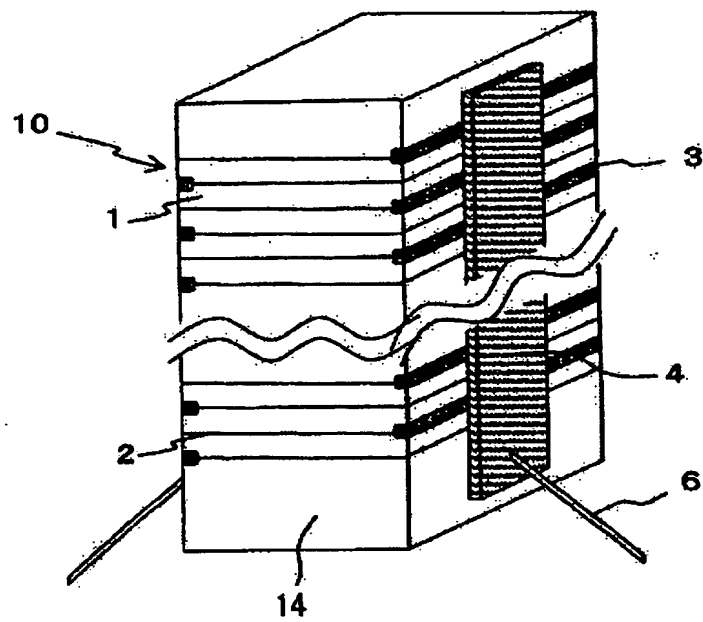
[図1A]



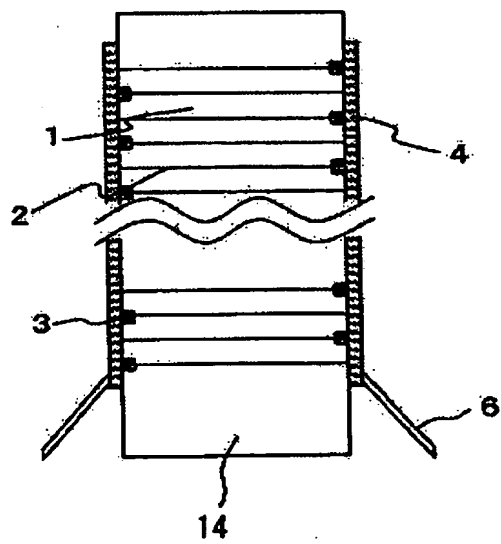
[図1B]



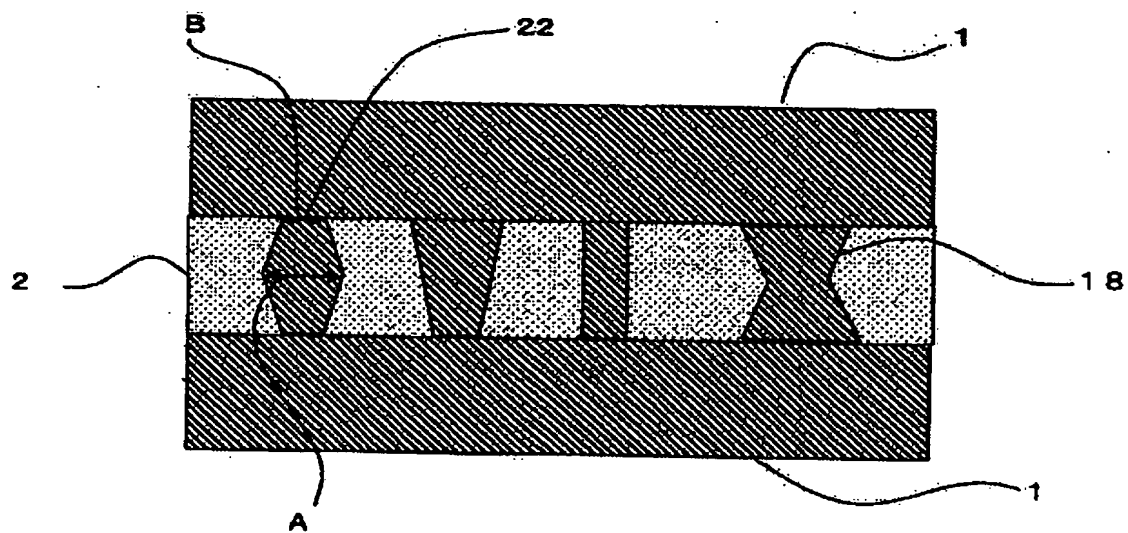
[図2A]



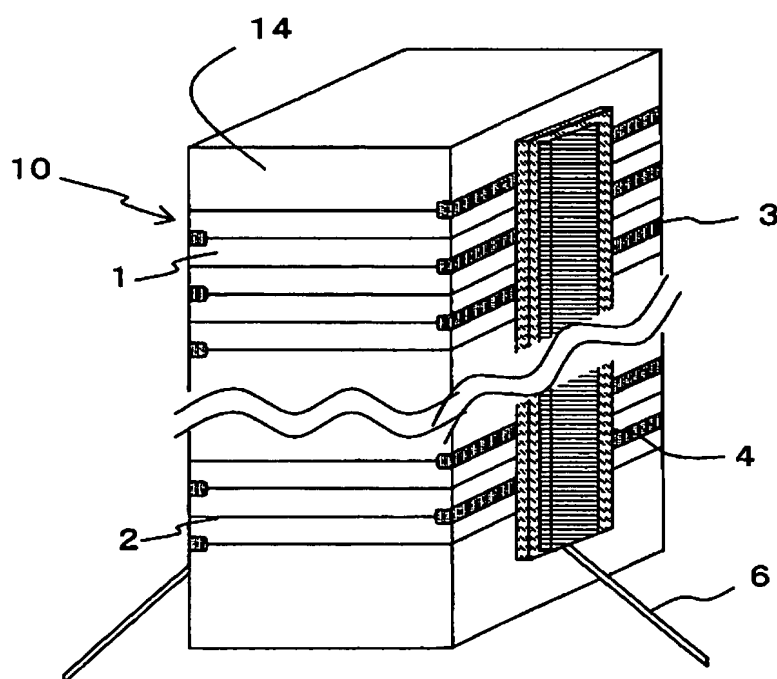
[図2B]



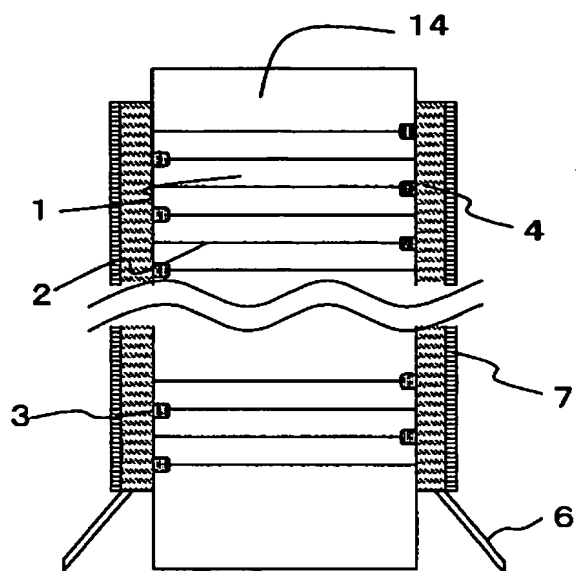
[図3]



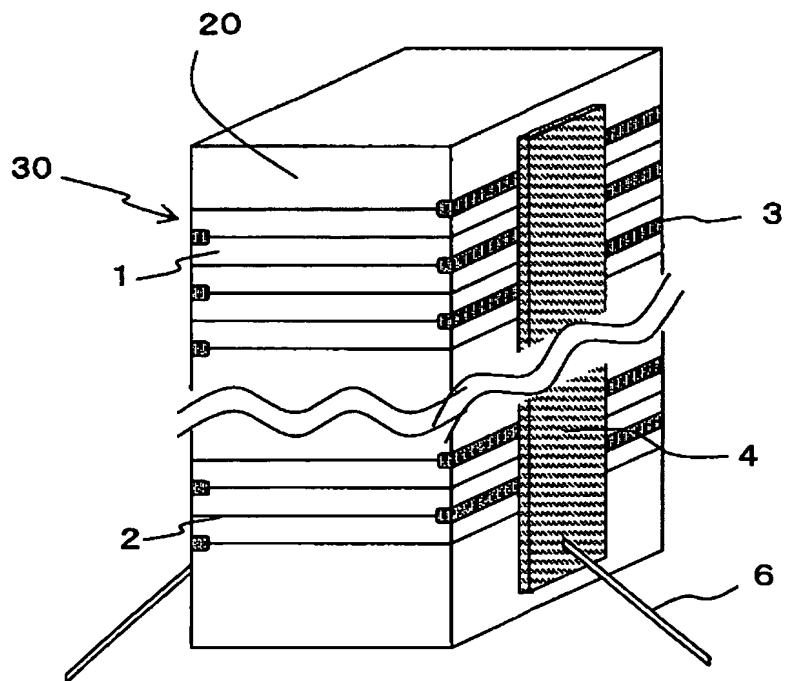
[図4A]



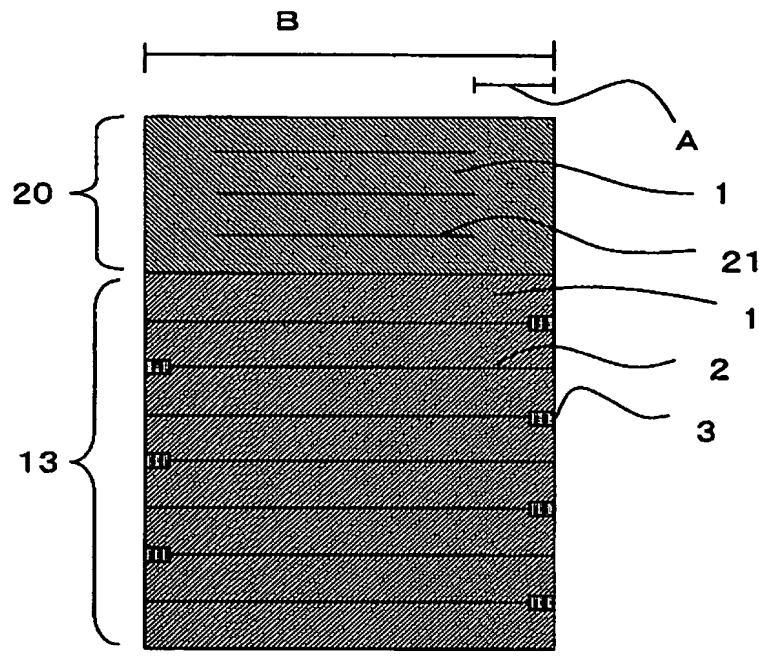
[図4B]



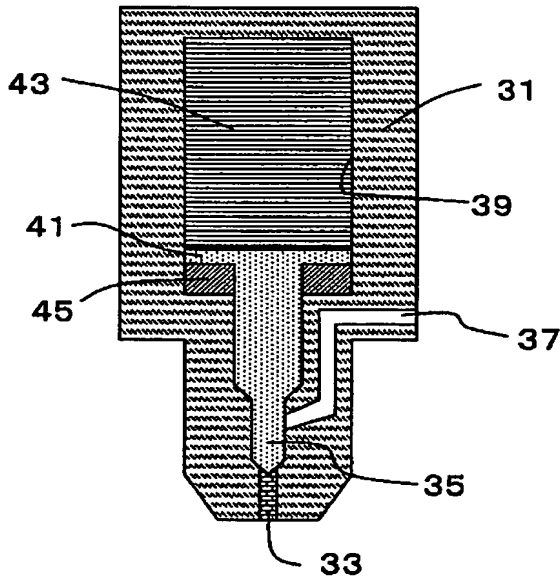
[図5A]



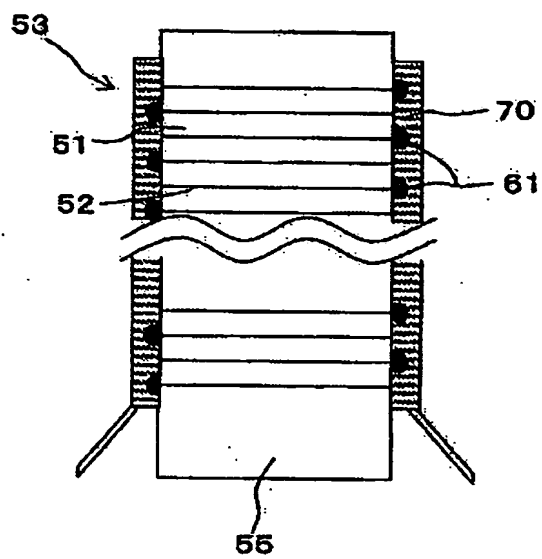
[図5B]



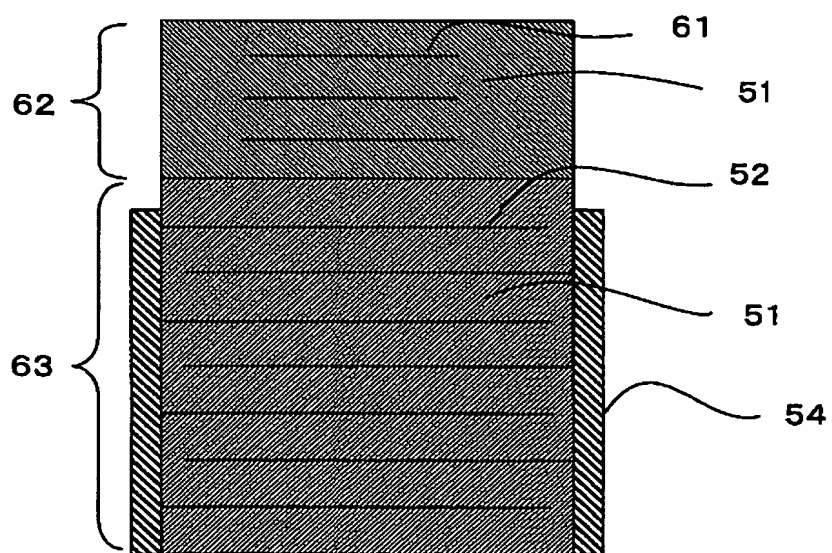
[図6]



[図7]



[図8]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/015849

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01L41/083, 41/22, F02M51/00, 51/06, B41J2/045, 2/055,  
F02D35/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01L41/083, 41/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2003-258328 A (Kyocera Corp.), 12 September, 2003 (12.09.03), Page 2, right column, line 20 to page 5, right column, line 28; Figs. 1 to 6 (Family: none)	1-11, 18, 20-29 12-17, 19, 30 31
Y	JP 9-270540 A (Chichibu Onoda Cement Corp.), 14 October, 1997 (14.10.97), Page 3, left column, line 3 to right column, line 12; Figs. 1 to 3 (Family: none)	12-17
Y	JP 2002-299710 A (Kyocera Corp.), 11 October, 2002 (11.10.02), Page 2, right column, line 39 to page 3, right column, line 12; Fig. 1 (Family: none)	19, 30

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered  
to be of particular relevance  
"E" earlier application or patent but published on or after the international  
filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is  
cited to establish the publication date of another citation or other  
special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the  
priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority  
date and not in conflict with the application but cited to understand  
the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
considered novel or cannot be considered to involve an inventive  
step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
considered to involve an inventive step when the document is  
combined with one or more other such documents, such combination  
being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
19 January, 2005 (19.01.05)

Date of mailing of the international search report  
08 February, 2005 (08.02.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01L41/083, 41/22, F02M51/00, 51/06,  
B41J2/045, 2/055, F02D35/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01L41/083, 41/22

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 2003-258328 A (京セラ株式会社), 2003.09.12, 第2頁右欄第20行-第5頁右欄第28行, 第1図-第6図 (ファミリーなし)	1-11, 18, 20-29
Y		12-17, 19, 30
A		31
Y	J P 9-270540 A (秩父小野田株式会社), 1997.10.14, 第3頁左欄第3行-右欄第12行, 第1図-第3図 (ファミリーなし)	12-17

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19.01.2005

国際調査報告の発送日

08.2.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

國島 明弘

4M

3238

電話番号 03-3581-1101 内線 3460



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2002-299710 A (京セラ株式会社) , 2002.10.11 , 第2頁右欄第39行-第3頁右欄第12行, 第1図 (ファミリーなし)	19, 30